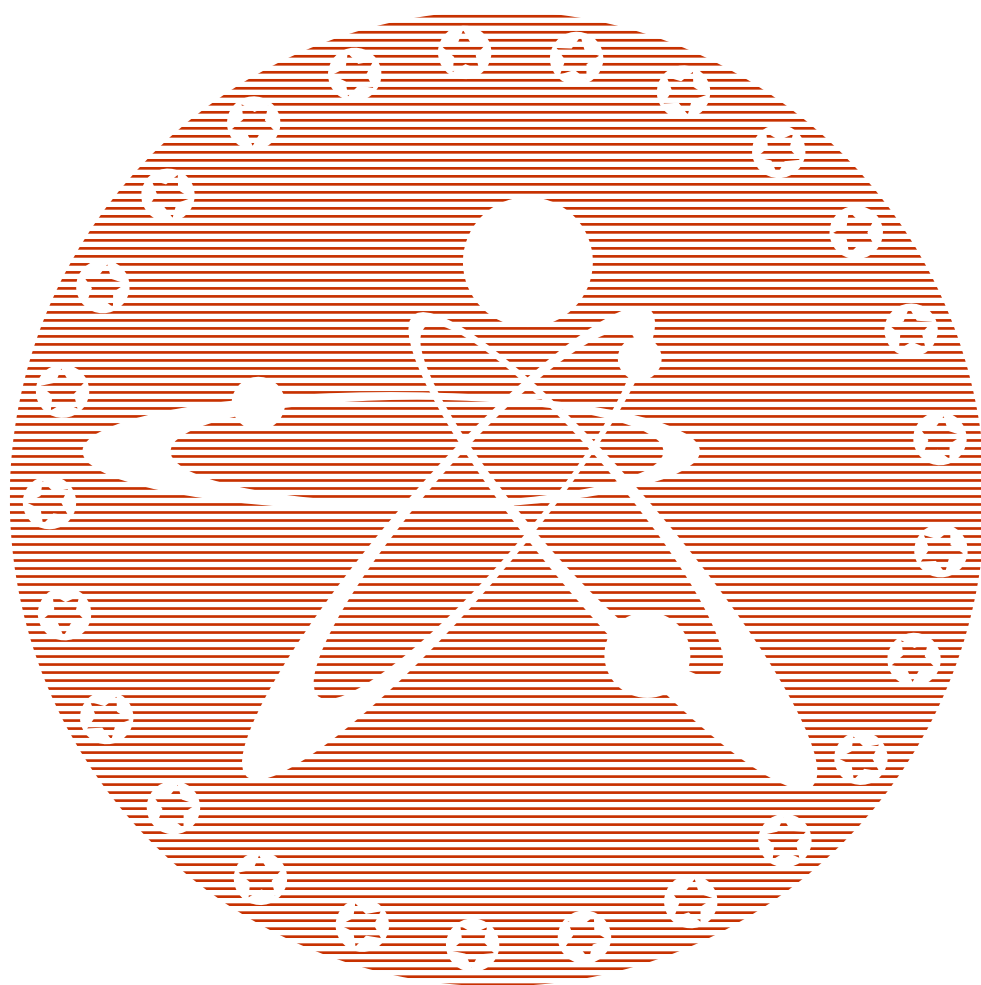


2024
ВЫПУСК 4

ISSN 1729-7516

ВЕСТНИК

ПЕРИОДИЧЕСКИЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ
НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА
РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН



Вестник НЯЦ РК

ПЕРИОДИЧЕСКИЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ
НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

ВЫПУСК 4(100), ДЕКАБРЬ 2024

Издается с января 2000 г.

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

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ: д.ф.-м.н. СКАКОВ М.К. – заместитель главного редактора,
к.б.н. АЙДАРХАНОВ А.О., д.ф.-м.н. БУРТЕБАЕВ Н.Т., д.т.н. ВИЕЛЕБА В. (Польша), к.ф.-м.н. ВИТЮК В.А.,
к.ф.-м.н. ВУРИМ А.Д., д.т.н. ГРАДОБОЕВ А.В. (Россия), д.ф.-м.н. КОПНИЧЕВ Ю.Ф. (Россия),
д.ф.-м.н. МИХАЙЛОВА Н.Н., д.ф.-м.н. СОКОЛОВА И.Н., д.ф.-м.н. ТАЖИБАЕВА И.Л.,
Prof. Dr. Yoichi FUJII-E (Япония), PhD Takahiro HAYASHI (Япония)

ҚР ҰЯО Жаршысы

ҚАЗАҚСТАН РЕСПУБЛИКАСЫ ҰЛТТЫҚ ЯДРОЛЫҚ ОРТАЛЫҒЫНЫҢ
МЕРЗІМДІК ҒЫЛЫМИ-ТЕХНИКАЛЫҚ ЖУРНАЛЫ

4(100) ШЫҒАРЫМ, ЖЕЛТОҚСАН, 2024 ЖЫЛ

NNC RK Bulletin

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

ISSUE 4(100), DECEMBER 2024

Журнал «Вестник НЯЦ РК» входит в перечень научных изданий, рекомендуемых Комитетом по обеспечению качества в сфере науки и высшего образования Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан для публикации основных результатов научной деятельности.

«ҚР ҰЯО жаршысы» журналы ғылыми қызметтің негізгі нәтижелерін жариялау үшін Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрлігінің Ғылым және жоғары білім саласындағы сапаны қамтамасыз ету комитеті ұсынған ғылыми басылымдар тізбесіне кіреді.

The Journal “NNC RK Bulletin” is included in the list of scientific publications recommended by Committee for Quality Assurance in the Field of Science and Higher Education of the Ministry of Science and Higher Education of the Republic of Kazakhstan for the publication of the main results of scientific activities.

СОДЕРЖАНИЕ

DEVELOPMENT OF A THERMOPHYSICAL MODEL FOR THE EXPERIMENTAL ASSEMBLY OF THE VCG-135 TEST BENCH TO STUDY THE INTERACTION OF CORIUM WITH METAL-COOLER IN THE CONDITIONS OF A SEVERE ACCIDENT	
M. K. Skakov, K. O. Toleubekov, M. K. Bekmoldin, A. S. Akaev	5
ОСОБЕННОСТИ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРИСТАЛЛОВ CsI:TI ОБЛУЧЕННЫХ БЫСТРЫМИ ИОНАМИ Xe	
A. T. Акилбеков, Г. М. Баубекова, Р. Н. Асылбаев, А. К. Даулетбекова, Г. М. Аралбаева, Ж. Т. Карипбаев, К. Бурканова.....	12
ЭФФЕКТИВНОСТЬ БИОРЕМЕДИАЦИИ ПОЧВЫ, ЗАГРЯЗНЕННОЙ НЕФТЕПРОДУКТАМИ, В КОНТЕКСТЕ ЭКОЛОГИЧЕСКОГО ТУРИЗМА	
Г. А. Онерхан, Е. Б. Баделгажы, Б. А. Капсалямов, З. К. Кыстаубаева, Е. Т. Сыздыков	21
ОЦЕНКА ЗАГРЯЗНЕНИЯ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫМИ МЕТАЛЛАМИ В СИСТЕМЕ “СНЕГОВОЙ ПОКРОВ – ПОЧВЕННЫЙ ПОКРОВ – РАСТИТЕЛЬНОСТЬ” НА ТЕРРИТОРИИ Г. ПАВЛОДАР И ПРИГОРОДА	
A. A. Фаурат, Г. С. Ажаев	36
МЕТОДИКА ПОДБОРА СОСТАВА ЦЕМЕНТНОЙ МАТРИЦЫ ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ ОБЛУЧЕННОГО УРАН-ГРАФИТОВОГО ТОПЛИВА	
O. C. Букина, Ю. Ю. Бакланова, М. Н. Азбергенов, М. А. Кукса	43
ИЗУЧЕНИЕ СТРУКТУРНОЙ РАЗУПОРЯДОЧЕННОСТИ В МОНОКРИСТАЛЛАХ CaF₂ ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ ИОНИЗИРУЮЩЕЙ РАДИАЦИИ	
Р. Н. Асылбаев, А. А. Кисабекова, Ф. У. Абуова, Б. К. Садуова, Г. М. Баубекова.....	54
ВЛИЯНИЕ МАРТЕНСИТНОГО ПРЕВРАЩЕНИЯ, ИНДУЦИРОВАННОГО ДЕФОРМАЦИЕЙ, НА МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА АУСТЕНИТНЫХ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ СТАЛЕЙ, ОБЛУЧЕННЫХ НЕЙТРОНАМИ В РЕАКТОРЕ ВВР-К	
A. B. Коломийцева, Д. А. Мережко, М. С. Мережко.....	60
ОТЫН ЭЛЕМЕНТИНІН МЕМБРАНАСЫ РЕТІНДЕ КЕУЕКТІ КРЕМНИЙДІ ЗЕРТТЕУ	
M. K. Скаков, А. М. Жилкашинова, А. Ж. Миниязов, Н. Қантай, А. Қыдырмолла, С. Кабдрахманова, Н. М. Мухамедова, Ф. Қ. Жанболатова	69
TO THE QUESTION ABOUT THE CURRENT STATE AND PROBLEMS OF FORMATION OF INVASIVE ICHTHYOFAUNA OF THE MIDDLE IRTYSH BASIN	
A. V. Ubaskin, K. K. Akhmetov, V. P. Kolpakova, Z. K. Shaimardanov, S. Z. Arynova, G. S. Azhaev	79
РАСЧЕТНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ В ОБОСНОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРОВЕДЕНИЯ ВНУТРИРЕАКТОРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА С ТОПЛИВОМ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО РЕАКТОРА ПРИ РЕАЛИЗАЦИИ ДЛИТЕЛЬНОГО РЕЖИМА РАБОТЫ РЕАКТОРА ИГР	
Н. Е. Мухамедов, В. А. Витюк, Г. А. Витюк, А. Д. Вурим, Р. Е. Келсингазина, С. А. Должиков, Д. Т. Женис, А. С. Сураев	88
ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ПОТЕРЬ ПЛАЗМЫ НА ТОКАМАКЕ КТМ	
A. Ж. Дуйсен, Б. Ж. Чектыбаев, Е. А. Кашикбаев, А. А. Жаксыбаева.....	96
ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО И ХИМИЧЕСКОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ НА ЦИТОГЕНЕТИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ ВЕЙНИКА НАЗЕМНОГО (CALAMAGROSTIS EPIGEJOS)	
K. C. Минкенова, Н. К. Нургайсинова, Н. В. Ларионова, М. Т. Дюсембаева, Л. А. Немытова	101
ССП АУМАҒЫНДА ӨСЕТІН АҚ ШИДІН (ACHNATHERUM SPLENDENS) ЦИТОГЕНЕТИКАЛЫҚ ПАРАМЕТРЛЕРІ	
K. C. Минкенова, А. В. Паницкий, А. Н. Мамырбаева.....	108

APPLICATION OF THE OPTIMIZATION THE PARAMETERS OF MEASURING TOOTH ENAMEL EPR SPECTRA FOR EMERGENCY HUMAN DOSIMETRY	
М. К. Skakov, А. О. Aidarkhanov, L. B. Kenzhina, D. B. Biyakhmetova, A. N. Mamyrbayeva	113
ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СТАБИЛИЗИРУЮЩИХ ДОБАВОК ДЛЯ НАПРАВЛЕННОЙ МОДИФИКАЦИИ И УПРОЧНЕНИЯ $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ КЕРАМИК	
А. Л. Козловский, М. Б. Кабиев, И. Е. Кенжина, А. У. Толенова	119
ИССЛЕДОВАНИЕ ВЕРТИКАЛЬНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ ВОДОТОКОВ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»	
Р. Г. Ермакова, А. К. Айдарханова, Ж. Е. Тлеуканова, А. С. Мамырбаева	128
СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК	
О. В. Рябенко, В. И. Дубровин	138
СПЕКТРАЛЬНО-КИНЕТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ КАТОДОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ НИОБАТОВ ЛАНТАНОИДОВ $(\text{Y}, \text{Lu}, \text{Gd})\text{NbO}_4:\text{Bi}^{3+}$	
А. А. Кисабекова, Н. А. Испулов, Р. Н. Асылбаев, А. Б. Базарбек, А. Д. Акылбекова, А. Ж. Жумабеков, Е. К. Жетписбаев	147
ИЗУЧЕНИЕ МЕХАНИЗМОВ СТРУКТУРНЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ СТАБИЛИЗИРОВАННЫХ КЕРАМИК НА ОСНОВЕ ЦИРКОНАТОВ ПРИ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОМ ОБЛУЧЕНИИ	
А. Л. Козловский, М. Б. Кабиев, И. Е. Кенжина, А. У. Толенова	153
ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ ВАРИАЦИИ ФАЗОВОГО СОСТАВА КОМПОЗИТНЫХ КЕРАМИК НА УСТОЙЧИВОСТЬ К РАДИАЦИОННЫМ ПОВРЕЖДЕНИЯМ	
А. Л. Козловский, С. Б. Азамбаев, А. М. Абшукирова	164
СИНТЕЗ MXENE И ПРИМЕНЕНИЕ В РОЛИ ЭЛЕКТРОДНОГО МАТЕРИАЛА ДЛЯ СУПЕРКОНДЕНСАТОРОВ	
А. М. Алиярова, М. Т. Джусамбаев, К. Аскарулы, С. Азат, Ш. Султахан, К. Шакенов, У. Е. Жантикеев, Ж. Лиу	174
ПОЛУЧЕНИЕ НАНОЦЕЛЛЮЛОЗЫ ДЛЯ ОЧИСТКИ ВОДЫ ОТ КРАСИТЕЛЕЙ	
Л. Н. Сеймуханова, У. Е. Жантикеев, К. С. Бексейтова, М. С. Кунарбекова, Б. У. Рахимова, Б. Д. Фазылов, А. М. Загитова, К. К. Кудайбергенов, С. Азат	181
РАЗРАБОТКА ТЕПЛОФИЗИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ЭЛЕКТРОПЛАВИЛЬНОЙ ПЕЧИ УСТАНОВКИ «EAGLE» ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ПРОТОТИПА КОРИУМА РЕАКТОРА НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ С НАТРИЕВЫМ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕМ	
А. С. Акаев, К. О. Толеубек, М. К. Бекмулдин, Г. Нурпаисова, С. Хасенова	191
СОВРЕМЕННЫЕ УРОВНИ РАДИОНУКЛИДНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ВОДНЫХ ОБЪЕКТОВ ПЛОЩАДКИ «ТЕЛЬКЕМ»	
А. К. Айдарханова, Н. В. Ларионова, А. С. Мамырбаева, Ж. Е. Тлеуканова, Т. Ю. Богатырева, Р. Г. Ермакова	196
СПИСОК АВТОРОВ	205

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-5-11>

УДК 621.039.587

DEVELOPMENT OF A THERMOPHYSICAL MODEL FOR THE EXPERIMENTAL ASSEMBLY OF THE VCG-135 TEST BENCH TO STUDY THE INTERACTION OF CORIUM WITH METAL-COOLER IN THE CONDITIONS OF A SEVERE ACCIDENT

M. K. Skakov¹, K. O. Toleubekov^{2, 3*}, M. K. Bekmuldin², A. S. Akaev²

¹⁾ RSE “National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan”, Kurchatov, Kazakhstan

²⁾ Branch “Institute of Atomic Energy” NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

³⁾ Shakarim University of Semey City, Semey, Kazakhstan

* E-mail for contacts: toleubekov@nnc.kz

This article presents the results of modeling of the temperature field of the experimental assembly of the VCG-135 test bench to study the interaction between model corium and candidate metal-coolers (zinc, antimony and manganese) in the conditions of a severe accident.

The need for modeling is associated with the probability of metal melting in the discharge device due to the heat flow from the heating crucible of the experimental assembly. Thus, the purpose of the modeling was the justification of the integrity of the design of the metal discharge device during the production of liquid corium in the crucible of the experimental assembly.

The thermophysical model was created in the ANSYS software. The temperature field of the experimental assembly was obtained at the moment of obtaining liquid corium as a result of the modeling. An analysis of the results showed that metal in the discharge device wouldn't reach the melting point. In this regard, the discharge device of the experimental assembly can be used in its current design for experiments conducting at the VCG-135 test bench.

At the same time, after the experiments, the thermophysical model was validated by comparing the calculated temperature values with experimental data. Validation of the model shows that the deviation of calculated and experimental temperature values at control points does not exceed acceptable limits (melting of the studied metal before interaction with corium). Thus, the developed thermophysical model can be used to justify further experiments on the VCG-135 test bench with the current experimental assembly.

Keywords: severe accident, corium, core catcher, metal-cooler, VCG-135 test bench, ANSYS, modeling.

INTRODUCTION

The most harmful consequences of a severe nuclear reactor accident are the core meltdown with the formation of corium and its release outside the reactor vessel [1–2]. Passive nuclear safety systems are provided in the nuclear power station design in the case of such a scenario. The core catcher is one of the passive safety systems and is the last barrier to the spread of corium during the destruction of the reactor vessel [3–6].

Currently, the National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan is conducting research on the possibility of using the boiling effect of metals to cool the surface of corium in the core catcher of the VVER reactor [7–8].

This idea is based on using the boiling effect of metals on the corium surface in a similar way to water cooling. In this regard, it is appropriate to conduct experimental studies to understand all features of such interaction.

The experiments on the study of the interaction between corium and candidate metal-coolers was conducted at the VCG-135 test bench. The VCG-135 test bench is a sealed water-cooled working chamber with a built-in inductor designed to perform high-temperature thermophysical and materials science studies [9–10]. Figure 1 shows the scheme and appearance of the working chamber of the VCG-135 test bench.

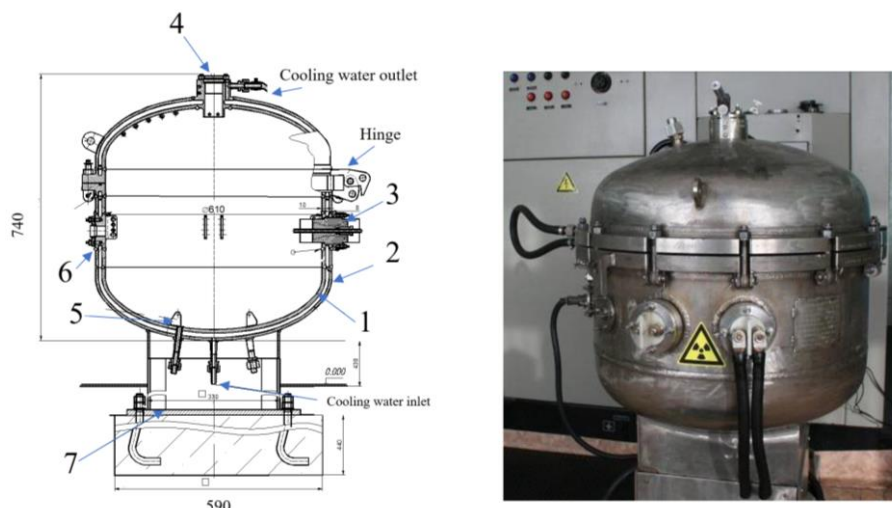
The experimental assembly consisted of a double graphite crucible and a developed metal discharging device. The discharge device made it possible to organize the discharge of solid metal fragments after receiving liquid corium into the crucible. The appearance and scheme of the experimental assembly of the VCG-135 test bench are presented in Figure 2.

The main uncertainty before the experiments was associated with the issue of the probable melting of the studied metal in the discharge device during obtaining of the liquid corium due to the heat flow from the graphite crucible.

In this regard, it was necessary to analyze the integrity of the metal discharge device design during liquid corium obtaining in the crucible of the experimental device before experiments. At the same time, one of the most effective ways for considering this issue with minimal cost is the method of computer modeling.

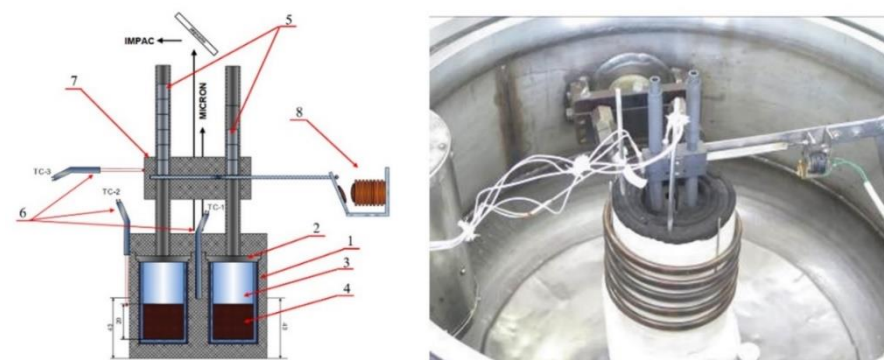
THERMOPHYSICAL MODEL FOR THE EXPERIMENTAL ASSEMBLY OF THE VCG-135 TEST BENCH

The objective of the modeling is to obtain the temperature field of the elements of the experimental assembly of the VCG-135 test bench when the temperature of corium in the crucible reaches ~2250 °C.



1 – inner tank of the power hull; 2 – external tank of the power hull; 3 – inductor current supply; 4 – viewing window; 5 – brackets for mounting the experimental assembly; 6 – electrode holders; 7 – foundation

Figure 1. Appearance and scheme of the working chamber of the stand VCG-135.



1 – graphite crucible; 2 – lid; 3 – tungsten glass; 4 – corium; 5 – metal-cooler; 6 – thermocouple; 7 – device for discharging the metal-cooler; 8 – electromagnetic drive

Figure 2. Experimental assembly in the working chamber of the VCG-135 test bench

To achieve this goal, in this article, an experimental situation is simulated when the corium prototype is heated in the graphite crucible to obtain a melt by method of the induction heating. Calculations of the thermal state of the thermophysical model were performed using the ANSYS software [17].

The thermophysical model for calculations was created based on the scheme of the experimental assembly in which an induction heater was used as a method to obtain a corium melt. Figure 1 shows the scheme of the experimental assembly.

Due to the symmetry of the experimental assembly relative to the central axis, the third-dimensional axisymmetric computational domain was chosen for modeling heat transfer. Figure 3 shows the developed thermophysical model of the experimental assembly. The thermophysical model takes into account the presence of the insulation, however it isn't shown on the figure due to the convenience of visualization.

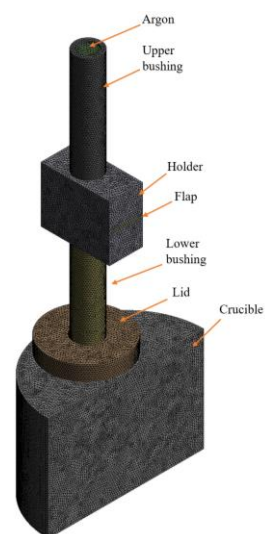


Figure 3. Thermophysical model of the experimental assembly

Control points TC-1, TC-2, TC-3 were selected for temperature control in the experimental assembly at the planned locations of thermocouples in future experiments during the calculation. Figure 2 shows the scheme of the control points locations and, accordingly, future thermocouples.

ELECTRICAL CALCULATION OF THE PARAMETERS OF THE "INDUCTOR-GRAPHITE CRUCIBLE" SYSTEM

It was necessary to calculate the efficiency of the inductor before modeling the induction heating of a graphite crucible. The efficiency shows the amount of energy invested in the inductor and transferred directly to the graphite crucible. Calculation of the efficiency of the inductor of the VCG-135 test bench was carried out using the following formulas according to [12].

The depth of current penetration into the inductor material Δ_1 is calculated by the formula:

$$\Delta_1 = 503 \cdot \sqrt{\frac{\rho_M}{f}},$$

where ρ_M – electrical resistivity of copper, $\rho_M = 2 \cdot 10^{-8}$ Ohm·m; f – power supply frequency, $f = 66$ kHz.

The depth of current penetration into graphite Δ_2 is:

$$\Delta_2 = 503 \cdot \sqrt{\frac{\rho_g}{f}},$$

where ρ_g – electrical resistivity of graphite, $\rho_g = 1.3 \times 10^{-5}$ Ohm·m;

The relative radius of the melt $\bar{R}_2$, which is used later when determining the values of auxiliary functions, is equal to:

$$\bar{R}_2 = \frac{d_1}{\Delta_2 \sqrt{2}},$$

where d_1 – graphite crucible diameter, $d_1 = 0.14$ m,

The active resistance of the inductor r_1 is calculated by:

$$r_1 = \rho_M \cdot \frac{\pi \cdot d_{1p}}{\Delta_1 \cdot h_1 \cdot k_s},$$

where d_{1p} – design diameter of the inductor turn, m; h_1 – inductor height, $h_1 = 0.12$ m; k_s – the fill factor of the inductor, equal to the ratio of the height of the inductor coil, which corresponds to the diameter of the inductor tube, to the winding pitch.

The calculated diameter of the inductor d_{1p} is determined as:

$$d_{1p} = d_o - d_{ext} + \Delta_1,$$

where d_o – average diameter of inductor turn, $d_o = 0.15$ m; d_{ext} – external diameter of the inductor turns tube, $d_{ext} = 0.01$ m.

Inductor fill factor k_s is determined as:

$$k_s = \frac{n \cdot d_{ext}}{h_1},$$

where n – number of inductor turns, $n = 5$.

Active resistance of the block r_2 is:

$$r_2 = \rho_g \cdot \frac{\pi \cdot d_1^2}{2 \cdot \Delta_2^2 \cdot h_2} \cdot A,$$

where $A = F(\bar{R}_2)$ – auxiliary function, which is determined according to the graph in [12]; h_2 – graphite crucible height, $h_2 = 0.18$ m.

If the condition is met $b_{mp} > 1.5 \cdot \Delta_1$ (copper tube wall thickness $b_{mp} = 2$ mm), internal reactance of the inductor x_{1b} has a value approximately equal to the active resistance of the inductor:

$$x_{1b} \approx r_1.$$

Internal block reactance x_2 is equal to:

$$x_2 = \rho_{cor} \cdot \frac{\pi \cdot d_1^2}{2 \cdot \Delta_2^2 \cdot h_2} \cdot B$$

where $B = F(\bar{R}_2)$ – auxiliary function, which is determined according to the graph in [12].

Leakage reactance x_s of the conventional single-turn inductor is determined by the formula

$$x_s = \omega \cdot \pi^2 \frac{d_2^2 - d_1^2}{h_2} \cdot 10^{-7},$$

where ω – circular frequency of the current, calculated as:

$$\omega = 2 \cdot \pi \cdot f.$$

Reactance x_1 of the unloaded inductor is equal to:

$$x_1 = \omega \cdot \pi^2 \frac{d_2^2}{h_1} \cdot k \cdot 10^{-7},$$

where d_2 – crucible external diameter, $d_2 = 0.14$ m; k – correction factor taking into account the end effects of a short inductor (Nagaoka coefficient).

The Nagaoka coefficient is a function of the d_2/h_1 ratio and has a value of 0.4 in the calculation.

The reverse circuit reactance x_0 is determined by the formula:

$$x_0 = x_1 \cdot \frac{h_1}{(h_1 - k \cdot h_2)}.$$

The parameter reduction coefficient C is calculated as:

$$C = \frac{1}{\left(\frac{r_2}{x_0}\right)^2 + \left(1 + \frac{x_s + x_2}{x_0}\right)^2}.$$

Reduced active resistance of the block r_2' is equal to:

$$r_2' = C \cdot r_2.$$

The reduced reactance of the block x_2' is determined by the formula:

$$x'_2 = C \cdot \left[x_s + x_2 + \frac{(x_s + x_2)^2 + r_2^2}{x_0} \right].$$

The equivalent active resistance of the inductor r is equal to:

$$r = r_1 + r'_2.$$

The equivalent reactance of the inductor x is:

$$x = x_{1b} + x'_2.$$

The equivalent impedance of the inductor z is calculated by the formula:

$$z = \sqrt{r^2 + x^2}.$$

The electrical efficiency of the inductor η_s is equal to:

$$\eta_s = \frac{r'_2}{r}.$$

THE CONDITIONS FOR CONDUCTING NON-STATIONARY CALCULATIONS

The following boundary conditions were determined for the calculation:

- initial temperature of the experimental assembly – 27 °C;
- mass of the heated corium – 40 gram;
- the graphite crucible is heated according to the diagram shown in Figure 4;
- the corium in the crucible was heated to a temperature of ~2250 °C (readings of the control point TC-1).

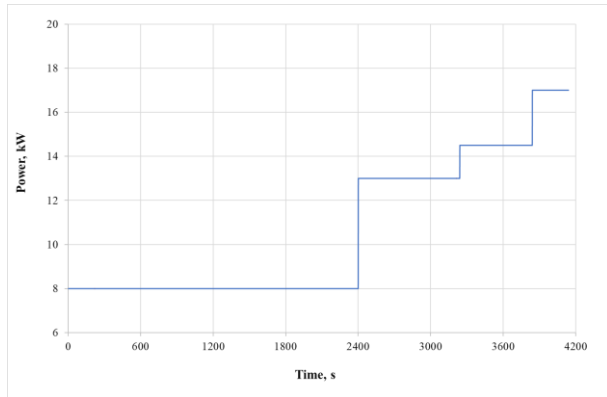


Figure 4. Heating diagram of a graphite crucible

At the same time, the energy released in the graphite crucible was set taking into account the efficiency of the inductor (see the calculation method in the previous section of this article) and experimental readings of the power factor. The calculation of the efficiency of the inductor of the VCG-135 test bench was conducted according to [12]. The electrical parameters of the inductor are shown in Table 1.

Table 1. Electrical parameters of the inductor

Parameter	Value
Active power of the inductor, kW	8–17
Calculated inductor efficiency, %	38
Inductor power factor, $\cos\phi$	0.58

The thermophysical model takes into account:

- dependence of the properties of the experimental assembly elements on temperature;
- heat exchange by radiation;
- convective heat transfer between the external surfaces of the model and the environment.

Zinc was chosen as the test material in this calculation as the metal with the lowest melting point relative to antimony and manganese. Some properties of corium during computer modeling were used according to literary sources [13–14]. It should be noted that due to shortages of data about dependence of the coefficient of thermal conductivity of corium on temperature, its value was set as a constant. The value of the thermal conductivity coefficient was set similarly to the previously performed calculations of corium heating in the ISTC project No. K-1265 under the INVECOR program [15–16]. The thermophysical properties of the experimental assembly were used according to the [17].

RESULTS OF MODELING THE EXPERIMENTAL ASSEMBLY OF THE VCG-135 TEST BENCH

Figure 5 shows a graph of temperature changes at control points during heating of a graphite crucible according to the proposed diagram. The graph shows that when the required temperature of the corium in the crucible is reached, the temperature in the area of placement of the metal under study will reach ~400 °C (readings of the TC-3 point).

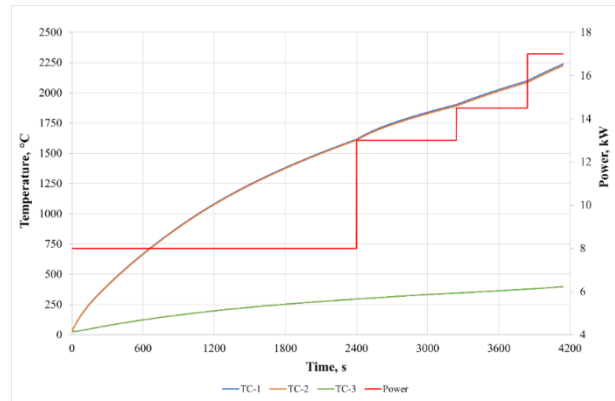


Figure 5. Heating diagram of a graphite crucible

In this regard, it can be argued that temperature of the zinc will not exceed the melting point (~420 °C) due to the heat flow from the heated elements during heating a graphite crucible to produce liquid corium.

Figure 6 shows the temperature field of the experimental assembly at final moment of the time. The figure clearly shows the heating pattern of the experimental device. It can be seen that heat transfer to the area of placement of the metal under study occurs due to thermal conductivity through the lower graphite sleeve.

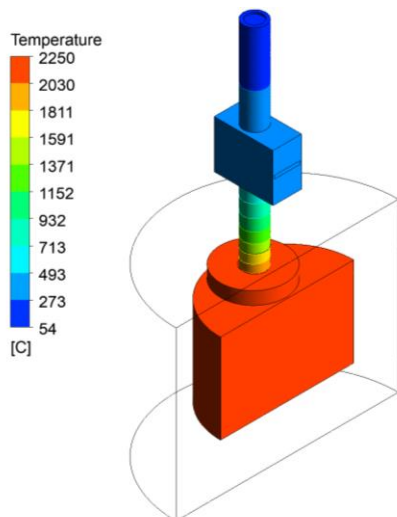


Figure 6. Temperature field of the experimental assembly

VALIDATION OF THE THERMOPHYSICAL MODEL OF THE EXPERIMENTAL ASSEMBLY OF THE VCG-135 TEST BENCH

Figure 7 shows a graph of changes in calculated and experimental temperature values during heating corium in a crucible to ~ 2250 °C according to the proposed heating diagram. The calculated values are represented in the graph by a dotted line, while the experimental values are represented by a solid line.

A comparison of the calculated and experimental temperature values at points TC-1 and TC-2 shows that the deviations between them average $\sim 8\%$. At the same time, the deviation in values at the TC-3 control point is no more than 2%.

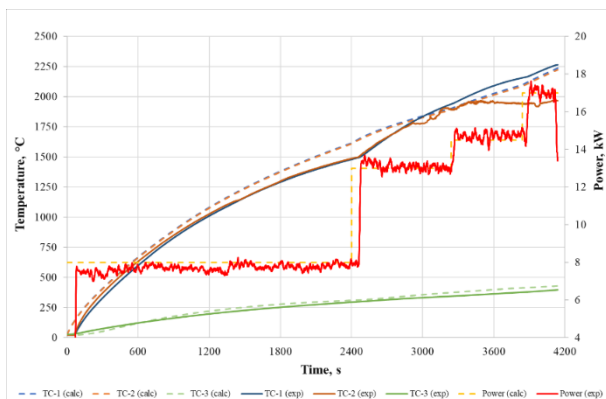


Figure 7. Experimental and calculated temperature values

During the experiment with zinc, the temperature in the area where the studied metal was placed reached about ~ 406 °C according to the readings of the TC-3 thermocouple at the moment the required temperature of the corium in the crucible was reached. Thus, at the moment the induction heater was turned off, the zinc was in a solid state and, as a result, solid metal was dumped into the crucible with liquid corium.

CONCLUSION

Modeling of the heating process of the graphite crucible of the experimental assembly of the VCG-135 test bench by induction heating. was performed using ANSYS software. The non-stationary calculation was performed in order to study the possibility of melting of the studied metals placed in the upper bushing of the discharge device due to heat fluxes from the heated crucible.

Numerical calculation has shown that when implementing the proposed heating diagram, the temperature of zinc will not exceed the melting point at the moment when the required temperature of corium is reached in a graphite crucible. At the same time, the melting point of zinc is lower relative to other candidate metals under consideration (antimony and manganese).

In this regard, the experimental assembly in the current design can be used for conducting experiments with candidate metals for cooling corium at the VCG-135 test bench. The proposed heating diagram of corium in a graphite crucible was used during conducting the experiments.

Analysis of the results of non-stationary calculations showed good agreement with experimental data. On average, deviations are within acceptable values. Thus, based on the data on the relative deviations of the calculated and experimental results, it can be stated that the developed thermophysical model is applicable for temperature measurements in the elements of the experimental assembly of the VCG-135 test bench during induction heating.

Funding

This research was funded by the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan within the framework of the scientific-technical program "Nuclear power engineering development in the Republic of Kazakhstan" (BR24792713).

REFERENCES

1. Journeau, C., Bouyer, V., Cassiaut-Louis, N. et.al. SAFEST roadmap for corium experimental research in Europe. Proceedings of 24th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE24). Charlotte, North Carolina, June 26-30, 2016. <https://doi.org/10.1115/ICONE24-60916>
2. Bechta, S., Ma, W., Miasoedov, A. et.al. On the EU-Japan roadmap for experimental research on corium behavior // Annals of Nuclear Energy. – 2019. – Vol. 124. – P. 541–547. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2018.10.019>
3. Kukhtevich I.V.; Bezlepkin V.V.; Granovskii V.S. et.al. The concept of localization of the corium melt in the ex-vessel stage of a severe accident at a nuclear power station with a VVER-1000 reactor // Thermal Engineering. – 2001. – Vol. 48, No. 9. – P. 699–706.
4. Sidorov, A.S., Nedorezov, A.B., Rogov, M.F. et.al. The device for core melt localization at the Tyan'van nuclear power station with a VVER-1000 reactor // Teploenergetika. – 2001. – Vol. 9. – P. 8–13.

5. Fischer M. The severe accident mitigation concept and the design measures for core melt retention of the European Pressurized Reactor (EPR) // Nucl. Eng. Des. – 2004. – Vol. 230, No. 1–3. – P. 169–180. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2003.11.034>
6. Ki Won Song, Thanh Hung Nguyen, Kwang Soon Ha et al. Experimental study on two-phase flow natural circulation in a core catcher cooling channel for EU-APR1400 using air-water system // Nucl. Eng. Des. – 2017. – Vol. 316. – P. 75–88. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2017.03.009>
7. Skakov, M. Toleubekov, K., Baklanov, V., et.al The method of corium cooling in a core catcher of a light-water nuclear reactor // Eurasian phys. tech. j. – 2022. – Vol. 19. – P. 69–77. <https://doi.org/10.31489/2022No3/69-77>
8. Skakov, M., Baklanov, V., Toleubekov, K. et.al Modeling of the corium and metals – coolers interaction in a core catcher of a light water reactor // NNC RK Bulletin. – 2023. Issue 2(94). – P. 49–57. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2023-2-49-57>
9. Mukhamedov, N.Y., Kozhakhmetov, Ye. A. and Tskhe, V.K. Microstructure and mechanical properties of the solidified melt obtained by the in-pile test // Annals of Nuclear Energy. – 2022. – Vol. 179. – P. 109404. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.109404>
10. Vurim, A., Mukhamedova N., Baklanova Y. et al. Information and analytical system as a promising database used to justify the safety of nuclear energy // Nucl. Eng. Des. – 2023. – Vol. 415. – P. 112704. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2023.112704>
11. ANSYS Fluent Tutorial Guide, 2016
12. «Электротермическое оборудование», справочник под общей редакцией Альтгаузена А.П., М.: Энергия. – 1980. [“Elektrotermicheskoe oborudovanie”, spravochnik pod obshchey redaktsiei Al'tgauzena A.P., Moscow.: Energiya. – 1980. (In Russ.)]
13. Асмолов В. Г., Загрязкин В. Н., Астахова Е. В., Вишневецкий В. Ю., Дьяков Е. К., Котов А. Ю., Репников В. М. Плотность $\text{UO}_2\text{--ZrO}_2$ -расплавов // Теплофизика высоких температур. – 2003. – Том 41, выпуск 5. – С. 714–719. [Asmolv V. G., Zagryazkin V. N., Astakhova E. V., Vishnevskiy V. Yu., D'yakov E. K., Kotov A. Yu., Repnikov V. M. Plotnost' $\text{UO}_2\text{--ZrO}_2$ -rasplavov // Teplofizika vysokikh temperatur. – 2003. – Vol. 41, Issue 5. – P. 714–719. (In Russ.)]
14. Позняк И.В., Шатунов А.Н., Печенков А.Ю. Измерение электропроводности расплава кориума // Известия СПбГЭТУ «ЛЭТИ». – 2008. – Вып.10. – С. 39–45. [Poznyak I.V., Shatunov A.N., Pechenkov A.Yu. Izmerenie elektroprovodnosti rasplava koriuma // Izvestiya SPbGETU “LETI”. – 2008. – Issue.10. – P. 39–45.]
15. ICTS project #K-1265 INVECOR (IN-Vessel Corium Retention in accident of water reactor) [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <https://istc.int/ru/project/DA8802253C138C29C3257052005303CF>
16. Бакланов В.В. Приборно-измерительный комплекс для исследования взаимодействия материалов ядерного реактора при тяжелых авариях: диссертация на соискание учёной степени кандидата технических наук, Юргинский технологический институт ТПУ, Югра, 2016. // [Электронный ресурс]. – Режим доступа: https://portal.tpu.ru/portal/pls/portal/!app_ds.ds_view_bknd.download_doc?fileid=4000 [Baklanov V.V. Priborno-izmeritel'nyy kompleks dlya issledovaniya vzaimodeystviya materialov yadernogo reaktora pri tyazhelykh avariakh: dissertatsiya na soiskanie uchenoy stepeni kandidata tekhnicheskikh nauk, Yurginskiy tekhnologicheskii institut TPU, Yugra, 2016 // [Electronic resource]. – Access mode: https://portal.tpu.ru/portal/pls/portal/!app_ds.ds_view_bknd.download_doc?fileid=4000 (In Russ.)]
17. Чиркин В.С., «Теплофизические свойства материалов ядерной техники», М.: АТОМИЗДАТ. – 1968. [Chirkin V.S., “Teplofizicheskie svoystva materialov yadernoy tekhniki”, Moscow.: ATOMIZDAT. – 1968. (In Russ.)]

АУЫР АВАРИЯ ЖАҒДАЙЫНДА КОРИУМНЫҢ САЛҚЫНДАТҚЫШ МЕТАЛДАРМЕН ӨЗАРА ӘРЕКЕТІН ЗЕРДЕЛЕУ ҮШІН ВЧГ-135 СТЕНДІН ЭКСПЕРИМЕНТТІК ҚҰРАСТЫРУДЫҢ ТЕПЛОФИЗИКАЛЫҚ МОДЕЛІН ӘЗІРЛЕУ

М. К. Скаков¹, К. О. Толеубеков^{2,3*}, М. К. Бекмүлдин², А. С. Акаев²

¹⁾ «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК, Курчатов, Қазақстан

²⁾ ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

³⁾ Семей қаласындағы Шақарым атындағы университет, Семей, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: toleubekov@nnc.kz

Осы мақалада АЭС-тің ауыр авариясы жағдайында модельдік кориумның кандидаттық салқындатқыш металдармен (мырыш, сурьма және марганец) өзара әрекетін зерделеу үшін ВЧГ-135 стендінің эксперименттік жинағының температуралық өрісін модельдеу нәтижелері келтірілген.

Модельдеу қажеттілігі эксперименттік құрылғының қыздырылатын тигельінен жылу ағыны есебінен шығару құрылғысында металдың балқу ықтималдығымен байланысты. Осылайша, модельдеу мақсаты эксперименттік құрылғының тигельінде сұйық кориум алу кезінде металды шығару құрылғысы конструкциясының тұтастығын негіздеу болды.

Теплофизикалық модель ANSYS бағдарламалық кешенінде әзірленді. Алынған нәтижелерді талдау шығару құрылғысындағы металл балқу нүктесіне жетпейтінін көрсетеді. Осыған байланысты эксперименттік құрастыруды шығару құрылғысы ВЧГ-135 стендіне эксперименттер жүргізу кезінде ағымдағы конструкциялық түрде пайдаланылуы мүмкін.

Сонымен қатар, эксперименттерден кейін температураның есептік мәндерін эксперименттік деректермен салыстыру жолымен жылу физикалық модельді валидациялау жүргізілді. Үлгіні валидациялау бақылау нүктелеріндегі температуралардың есептік және эксперименттік мәндерінің ауытқуы рұқсат етілген шектерден аспайтынын көрсетеді (кориуммен әрекеттеспес бұрын зерттелетін металды балқыту). Осылайша, әзірленген жылу физикалық модель ағымдағы эксперименттік құрастырумен ВЧГ-135 стендіне одан әрі эксперименттерді негіздеу кезінде пайдаланылуы мүмкін.

Түйін сөздер: ауыр авария, кориум, балқыма тұзағы, металл–салқындатқыш, ВЧГ-135 стенді, ANSYS, моделдеу.

РАЗРАБОТКА ТЕПЛОФИЗИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ СБОРКИ СТЕНДА ВЧГ-135 ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ КОРИУМА С МЕТАЛЛАМИ- ОХЛАДИТЕЛЯМИ В УСЛОВИЯХ ТЯЖЕЛОЙ АВАРИИ

М. К. Скаков¹, К. О. Толеубеков^{2,3*}, М. К. Бекмулдин², А. С. Акаев²

¹⁾ РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Курчатов, Казахстан

²⁾ Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

³⁾ Университет имени Шакарима города Семей, Семей, Казахстан

* E-mail для контактов: toleubekov@nnc.kz

В настоящей статье приведены результаты моделирования температурного поля экспериментальной сборки стенда ВЧГ-135 для изучения взаимодействия модельного кориума с кандидатными металлами-охладителями (цинк, сурьма и марганец) в условиях тяжелой аварии АЭС.

Необходимость моделирования обусловлена вероятностью плавления металла в устройстве сброса за счет теплового потока от нагревающегося тигля экспериментального устройства. Таким образом, цель моделирования заключалась в обосновании целостности конструкции устройства сброса металла во время получения жидкого кориума в тигле экспериментального устройства.

Теплофизическая модель была разработана в программном комплексе ANSYS. Анализ полученных результатов показывает, что металл в устройстве сброса не достигнет точки плавления. В связи с этим, устройство сброса экспериментальной сборки может быть использовано в текущем конструкционном виде при проведении экспериментов на стенде ВЧГ-135.

В тоже время, после экспериментов была проведена валидация теплофизической модели путем сравнения расчетных значений температуры с экспериментальными данным. Валидация модели показывает, что отклонение расчетных и экспериментальных значений температур в контрольных точках не превышают допустимых пределов (плавление исследуемого металла перед взаимодействием с кориумом). Таким образом, разработанная теплофизическая модель может быть использована при обосновании дальнейших экспериментов на стенде ВЧГ-135 с текущей экспериментальной сборкой.

Ключевые слова: тяжелая авария, кориум, ловушка расплава, металл–охладитель, стенд ВЧГ-135, ANSYS, моделирование.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-12-20>

УДК 538.91; 538.971; 537.862

ОСОБЕННОСТИ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРИСТАЛЛОВ CsI:Tl ОБЛУЧЕННЫХ БЫСТРЫМИ ИОНАМИ Xe

А. Т. Акилбеков¹, Г. М. Баубекова¹, Р. Н. Асылбаев², А. К. Даулетбекова¹,
Г. М. Аралбаева^{1*}, Ж. Т. Карипбаев¹, К. Бурканова¹

¹⁾ Евразийский национальный университет им. Л. Н. Гумилева, Астана, Казахстан

²⁾ Маргулан университет, Павлодар, Казахстан

* E-mail для контактов: agm_555@mail.ru

Сцинтилляционные кристаллы CsI:Tl широко используются в экспериментах по ядерной физике и физике высоких энергий. В настоящей работе проведено исследование и анализ люминесцентных свойств кристаллов CsI:Tl, вызванных облучением ионами ^{132}Xe с энергией 230 МэВ, до флюенсов ($1 \cdot 10^{11}$ – $1 \cdot 10^{14}$ ион/см²) при 295 К (ускоритель ДЦ-60, Астана, Казахстан). Исследование проводилось методами оптической абсорбционной и люминесцентной спектроскопии, также времени-разрешенной оптически стимулированной люминесценции. Поверхность исследовалась с помощью атомно-силовой микроскопии. Установлено уменьшение интенсивности сцинтилляционной полосы свечения 553 нм и ее светового выхода с увеличением флюенса. Конверсионная эффективность для исследованных образцов не зависит от флюенса. Таким образом радиационное повреждение не влияет на конверсионную эффективность кристалла CsI:Tl. Формирование треков не снижают конверсионную эффективность кристалла CsI:Tl, но участвуют в сцинтилляционном процессе, вызывая реабсорбцию энергии от Tl^+ -центров, что приводит к деградации светового выхода.

Ключевые слова: монокристалл CsI:Tl, сцинтилляционная люминесценция, ионное облучение, световой выход, конверсионная эффективность, ионные треки.

ВВЕДЕНИЕ

Люминесцентные кристаллы CsI и CsI:Tl известны как очень эффективные сцинтилляционные материалы благодаря широкому использованию в экспериментах по ядерной физике и физике высоких энергий. Обычно CsI:Tl используется для обнаружения ионизирующего излучения, в частности ионов и продуктов деления [1]. Разработка кремниевых фотодиодов большой площади, квантовая эффективность которых соответствовала спектру CsI:Tl, сильно стимулировала использование этого кристалла в экспериментах по ядерной физике для изготовления больших массивов детекторов [2, 3]. По этим причинам в последние годы много работ связано с изучением механизмов переноса энергии, участвующих в сцинтилляционном процессе [4–10] и зависимости светового выхода от концентрации Tl^+ [11, 12]. Действительно, более глубокое знание этих процессов могло бы упростить трудоемкие процедуры калибровки, которые необходимы для настройки детекторных решеток, состоящих из нескольких десятков кристаллов CsI:Tl.

Спектр люминесценции CsI:Tl состоит из широкой полосы с максимумом 550 нм, возникающей в результате рекомбинации автолокализованной дырки, также называемой V_k -центром, с электроном вблизи иона Tl^+ [13, 14]. Вместе с этой полосой присутствуют еще три компонента: плечо при 480 нм, которое иногда приписывают дефектам, связанным с вакансиями [11], но которое, скорее всего, связано с той же рекомбинацией $V_k - e^-$ в другой конфигурации [13, 15], полоса при 400 нм, которую приписывают

оптическому переходу возбужденного состояния Tl^+ [13], и, иногда, пик при 300–310 нм, который связан с переходом чистого кристалла CsI [1, 16]. Последнее излучение широко изучается из-за очень быстрого времени жизни ~ 10 нс, но его происхождение до сих пор остается предметом споров.

Следует также подчеркнуть, что CsI является кристаллом семейства щелочно-галогидных кристаллов (ЩГК) с более высокой радиационной стойкостью. Радиационные повреждения в ЩГК подробно изучались в течение многих десятилетий [17–21]. В настоящее время хорошо известно, что первичные дефекты Френкеля F- и H-центры образуются в результате безизлучательного распада автолокализованных экситонов. Кроме того, заряженные пары Френкеля, т. е. анионные вакансии и междоузельные ионы, так называемые α -I пары (возникают в результате туннельной перезарядки первичных F-H пар [22]. После длительного облучения их концентрация может быть достаточно высокой. Радиационно-индуцированным дефектам в ЩГК со структурой типа CsCl, которые важны для многих применений, уделяется не слишком много внимания. Это особенно важно для кристаллов CsI в связи с их широким использованием в сцинтилляционных детекторах частиц [23–25].

Существует несколько исследований радиационного повреждения кристаллов CsI и CsI:Tl облученных частицами при комнатной температуре [26–33], где анализировались спектры светового выхода или пропускания [34] после облучения ^{60}Co [35–40], ^{137}Cs [41], или протонами с энергией 12 ГэВ [42]. Создание F центров в CsI и CsI:Tl исследовалось при облуче-

нии быстрыми тяжелыми ионами криптона при 15 К в работе [43]. Для изучения кинетики образования дефектов при облучении ионным пучком в кристаллах CsI:Tl с различными концентрациями Tl⁺ была использована люминесценция, индуцированная ионным пучком (IBIL). Кристаллы были облучены H⁺ и ⁴He⁺ с энергией 1,8 МэВ [44].

При облучении CsI быстрыми тяжелыми ионами наблюдаются изменения в люминесценции, связанные с образованием F-центров, которые являются анионными вакансиями, захватывающими электроны. Эти дефекты вызывают понижение прозрачности материала и могут препятствовать сцинтилляционным процессам, также возможно создание поверхностных дефектов (хиллоков) и трещин.

Очевидно, что радиационное повреждение сцинтилляционных материалов ограничивает их применение. В общем случае радиационное повреждение создает центры окраски, которые уменьшают прозрачность, разрушает люминесцентные центры в материале или препятствует образованию люминесцентных центров в материале. Поэтому очень важно знать поведение люминесцентных материалов в сильных полях радиации.

Целью данной работы является исследование и анализ люминесцентных свойств кристаллов CsI:Tl, вызванных облучением быстрыми тяжелыми ионами ксенона с энергиями осколков деления в зависимости от флюенса методами оптической абсорбционной и рентгенолюминесцентной спектроскопии, а также атомно-силовой микроскопии.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В исследовании использовались кристаллы CsI:Tl компании Aliaenson (Германия), выращенные по методу Чохральского. Кристаллы имеют объемно-центрированную кубическую структуру CsCl. Образцы имели размеры 5×5×0,5 мм. Концентрация таллия составила 0,5%. Облучение образцов проводилось на ускорителе ДЦ-60 ионами 220 МэВ ¹³²Xe до флюенсов от 10¹¹ до 10¹³ ион/см², при 300 К. На рисунке 1 и в таблице 1 приведены результаты по расчету параметров иона 230 МэВ ¹³²Xe в кристаллах CsI, рассчитанные с помощью кода SRIM [45], где S_e – удельные ионизационные потери энергии (электронные) и S_n – упругие потери энергии (ядерные), а R – длина пробега иона в кристалле.

Таблица 1. Параметры иона 230 МэВ ¹³²Xe в кристалле CsI

Энергия иона, МэВ	(dE/dx) _{elec} , S _e , кэВ/нм	(dE/dx) _{nuc} , S _n , кэВ/нм	Длина пробега, R, μm
230,00	15,19	0,05729	24,76

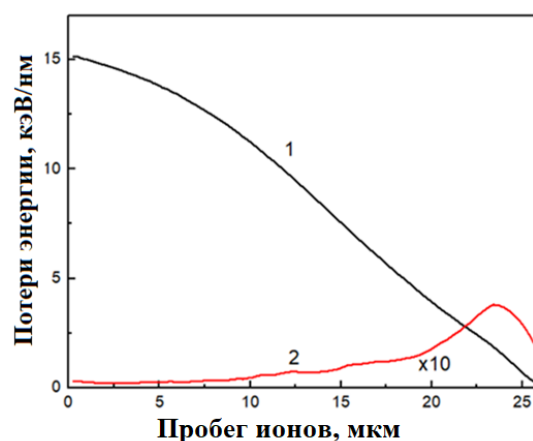


Рисунок 1. Потери энергии ионами 230 МэВ ¹³²Xe в кристалле CsI: 1 – удельные ионизационные потери (электронные потери энергии); 2 – упругие потери энергии (ядерные потери энергии)

Отношение S_e / S_n = 265, то есть ионизационные потери доминируют и электронные возбуждения участвуют в создании радиационных дефектов.

Спектры оптического поглощения были измерены с помощью двухлучевого спектрофотометра T8DCSIS19-2 (Китай) в спектральном интервале 190–900 нм.

Спектры фотолюминесценции и возбуждения были измерены на универсальном спектрофлуориметре CM2203 Солар (Беларусь). Диапазон длин волн от 220 до 920 нм.

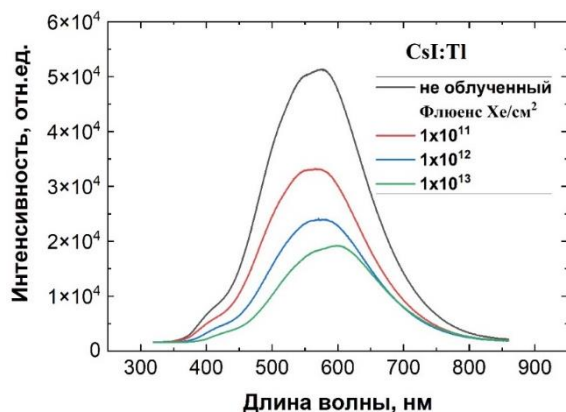
Кинетика затухания люминесценции измерялись с помощью системы с перестраиваемым лазером Laser Ekspla NT ns tunable (2708122) с длительностью импульса 5 нс (Вильнюс, Литва).

Морфология поверхности образцов CsI:Tl исследовалась методом атомно-силовой микроскопии с помощью микроскопа AIST-NT SmartSPM при размерах сканирования 30×30 мкм.

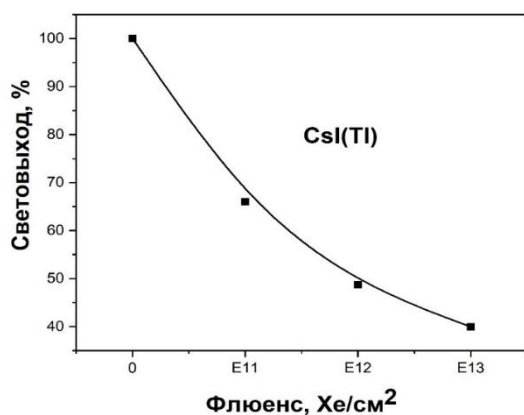
РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 2 представлены спектры рентгенолюминесценции (РЛ) U = 30 кВ, I = 10 мА кристаллов CsI:Tl, облученных ионами ¹³²Xe с энергией 230 МэВ в зависимости от флюенса (дозы). Как следует из рисунка 2а, во всем исследованном спектральном диапазоне доминирует хорошо известная сцинтилляционная полоса 553 нм (2,24 эВ) центра Tl⁺ [46].

С увеличением флюенса наблюдается уменьшение интенсивности РЛ, а также уменьшается световой выход свечения этого центра. На приведенном рисунке 2б показано изменение световыходов рентгенолюминесценции (в процентах) для ионно-облученных кристаллов CsI:Tl при различных флюенсах ионов. Исходный (необлученный) кристалл взят в качестве эталона с максимальным световыходом, который составляет 100%. При увеличении флюенса наблюдается значительное снижение световыхода.



а)



б)

Рисунок 2. Зависимость спектров РЛ кристаллов CsI:Tl (а) и светового выхода ФЛ (б) от флюенса; образцы облучались ионами 230 МэВ ^{132}Xe при комнатной температуре, $\lambda_{\text{ex}} = 320$ нм

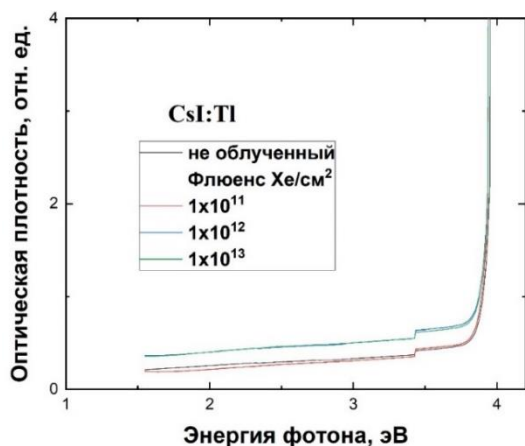


Рисунок 3. Спектр поглощения кристалла CsI:Tl в зависимости от флюенса; образцы облучались ионами 230 МэВ ^{132}Xe , при 295 К

При флюенсе порядка 10^{11} ионов/см² световыход снижается примерно до 75%, а при флюенсе 10^{12} ионов/см² – до 55%, при флюенсе 10^{13} ионов/см² световыход падает до 40%. Падение световыхода с увеличением флюенса может быть связано с образованием

радиационных дефектов в кристалле CsI:Tl. Облучение ионами приводит к повреждению кристаллической решетки, что нарушает процессы рекомбинации электронов и дырок, которые ответственны за люминесценцию. Ионное облучение вызывает накопление дефектов в решетке, таких как вакансии и междоузельные атомы, которые могут действовать как центры рекомбинации, поглощающие энергию, что приводит к уменьшению эффективности световыхода. Световыход РЛ кристаллов CsI:Tl значительно снижается с увеличением флюенса ионов, что указывает на деградацию кристалла под воздействием ионного облучения. Следует отметить, что это известный факт, что воздействие радиации на кристаллы CsI:Tl приводит к ухудшению их сцинтилляционных параметров [47–54].

С ростом флюенса световой выход снижается нелинейно, как показано на рисунке 3. При этом можно утверждать, что уменьшение светового выхода не связано с заметной потерей прозрачности кристалла, который сохраняет практически ту же прозрачность в одном и том же спектральном диапазоне до и после облучения при разных уровнях флюенса, что также иллюстрируется на рисунке 3.

Следует отметить, что в процессе ионного облучения по данным термопары, установленных на мишени кристалл нагревается до температуры $T \approx 370$ К и при таких высоких температурах центры окраски уже не стабильны из-за термической ионизации, поэтому кристалл CsI:Tl оказывается чрезвычайно устойчивым к воздействию радиации.

На рисунке 4 представлены кинетики затухания свечения 553 нм в кристаллах, облученных ионами 230 МэВ ^{132}Xe при 295 К, в зависимости от флюенса. Возбуждение осуществлялось импульсом лазера с длиной волны 320 нм. Закон затухания в аналитической модели времени-разрешенной оптически стимулированной люминесценции (внутрицентральной) подчиняется экспоненциальному закону. Нахождение характеристических времен затухания и соответствующих амплитуд были реализовано по следующей формуле:

$$I_t = \sum_{i=1}^N I_{0i} \cdot \exp(-t / \tau_{i3})$$

где τ_{i3} – характеристическое время затухания i -го компонента свечения (время, в течение которого интенсивность свечения убывает в e раз); I_t – величина сигнала в момент времени t ; I_{0i} – амплитудное (при $t = 0$) значение сигнала компонента с постоянной затухания τ_{i3} ; t – текущая координата времени.

Кинетика затухания ФЛ содержит две компоненты (рисунок 4). В таблице 2 приведены значения τ_1 и τ_2 характеристические времена затухания этих компонент, I_1 и I_2 амплитуды.

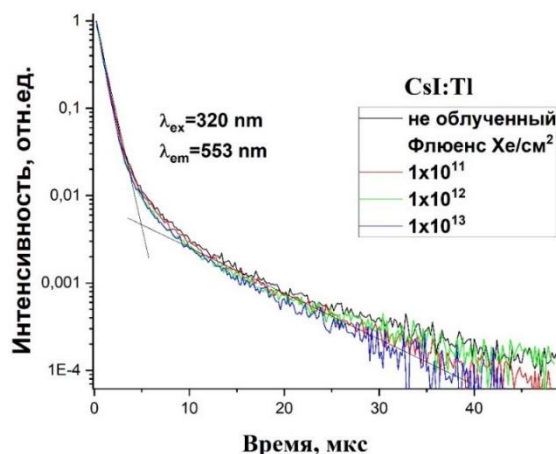


Рисунок 4. Затухание свечения 553 нм в кристаллах, облученных ионами 230 МэВ ^{132}Xe при 295 К, в зависимости от флюенса; возбуждение осуществлялось импульсом лазера с длиной волны 320 нм

Таблица 2. Параметры кинетики затухания фотолюминесценции 533 нм, возбужденной лазерным импульсом с $\lambda_{\text{ex}} = 320$ нм, кристаллов CsI:Tl, облученных ионами 230 МэВ ^{132}Xe при 295 К, в зависимости от флюенса

Флюенс, ион/см ²	I_{01}	I_{02}	τ_1 , мс	τ_2 , мс
10^{11}	791498	16916	0,496	2,996
10^{12}	580884	9444	0,47	3,21
10^{13}	602173	13557	0,48	2,73

Из рисунка 4 и таблицы 2 видны изменения в динамике люминесценции ионно-облученных образцов. Значения для τ_1 и τ_2 (время жизни быстрых и медленных компонент затухания) указывают на две фазы рекомбинации: τ_1 (быстрая компонента) – незначительно изменяется при увеличении флюенса, что может свидетельствовать о дефектах, влияющих на быстрые переходы; τ_2 (медленная компонента) – показывает большую изменчивость и указывает на влияние дефектов, созданных ионами, на более медленные процессы релаксации.

С увеличением дозы ионного облучения наблюдается значительное снижение люминесцентных свойств кристалла CsI(Tl). Наиболее заметные изменения происходят при флюенсе $1 \cdot 10^{12}$ и $1 \cdot 10^{13}$ ион/см², что указывает на повреждения кристаллической структуры. Время жизни люминесценции сокращается незначительно, а интенсивность уменьшается, что связано с образованием дефектов и безызлучательных центров рекомбинации.

В работе [55] показано, что в спектре радиационно-индуцированного поглощения (облучение γ -квантами) присутствуют две группы активаторных центров, с первой группой связаны полосы с максимумом: 3,18 эВ и 2,70 эВ. Вторая группа связана с максимумами: 2,88, 2,38, 2,21, 1,48 и 1,26 эВ. Эти два ти-

па активаторных центров окраски представляют собой, согласно авторам, примесь-вакансионные диполи Tl^0V_a^+ и $\text{Tl}^{2+}\text{V}_c^-$. По мнению авторов, деградация светового выхода облученных кристаллов CsI:Tl обусловлена излучательным переносом энергии от Tl^+ к Tl^0V_a^+ центрам, свечение которых потушено при температурах выше 200 К, в то время как длинноволновый спектральный сдвиг и изменение кинетики затухания сцинтилляций вызвано безызлучательным резонансным переносом энергии от Tl^+ к $\text{Tl}^{2+}\text{V}_c^-$ центрам окраски.

При облучении быстрыми тяжелыми ионами эффект деградации может быть обусловлен макродефектами (хиллоки на поверхности и треки), рисунок 5.

На рисунке 5 представлены снимки с атомно-силового микроскопа (АСМ) CsI:Tl, облученного ионами 230 МэВ ^{132}Xe , до флюенса $1 \cdot 10^{13}$ ион/см² при 295 К. На снимках видно формирование треков, их перекрывание, а также образование хиллоков. Пороговая энергия трекообразования для ЦГК ≥ 5 кэВ/нм, что значительно меньше электронных потерь иона 230 МэВ ^{132}Xe в CsI:Tl (таблица 1). Создание трековых областей приводит к их аморфизации, нарушению свободного движения электронных возбуждений (ЭВ), особенно это касается возможности автолокализации экситонов (АЛЭ). Оптические характеристики экситонов в монокристалле CsI при 4,2 К представлены в таблице 3 [56], где E_g – ширина запрещенной зоны, E_{ex} – максимум полосы поглощения свободных экситонов с $n = 1$, $E_{\text{max}}(\pi, \sigma)$ – максимум люминесценции АЛЭ, τ – время жизни.

Сейчас принята структурная классификация АЛЭ по параметру относительного стока сдвига S_R^0 [57]. При значениях $0,25 < S_R^0 < 0,34$ имеем структуру on-centre, а при значениях $0,35 < S_R^0 < 0,46$ АЛЭ существует как weak off-. Поскольку люминесценция триплетного экситона доминирует, то АЛЭ преимущественно в CsI:Tl в структуре weak off центра. Свободные экситоны до автолокализации проходят расстояние которое принято называть длиной пробега. Длина пробега очень сильно зависит от температуры и при $T = 5$ К, она равна $1000 a$, где a – постоянная решетки, а для температуры 80 К, длина пробега АЛЭ, становится равной $376 a$.

Таким образом, вследствие создания треков и перекрывания треков пространство для свободного движения ЭВ резко сужается, что приводит к уменьшению АЛЭ, а при создании Френкелевских пар дефектов, они из-за невозможности разбегания будут аннигилировать. Поскольку эти дефекты не снижают конверсионную эффективность кристалла CsI:Tl, но участвуют в сцинтилляционном процессе, в виде ре-абсорбции энергии от Tl^+ -центров.

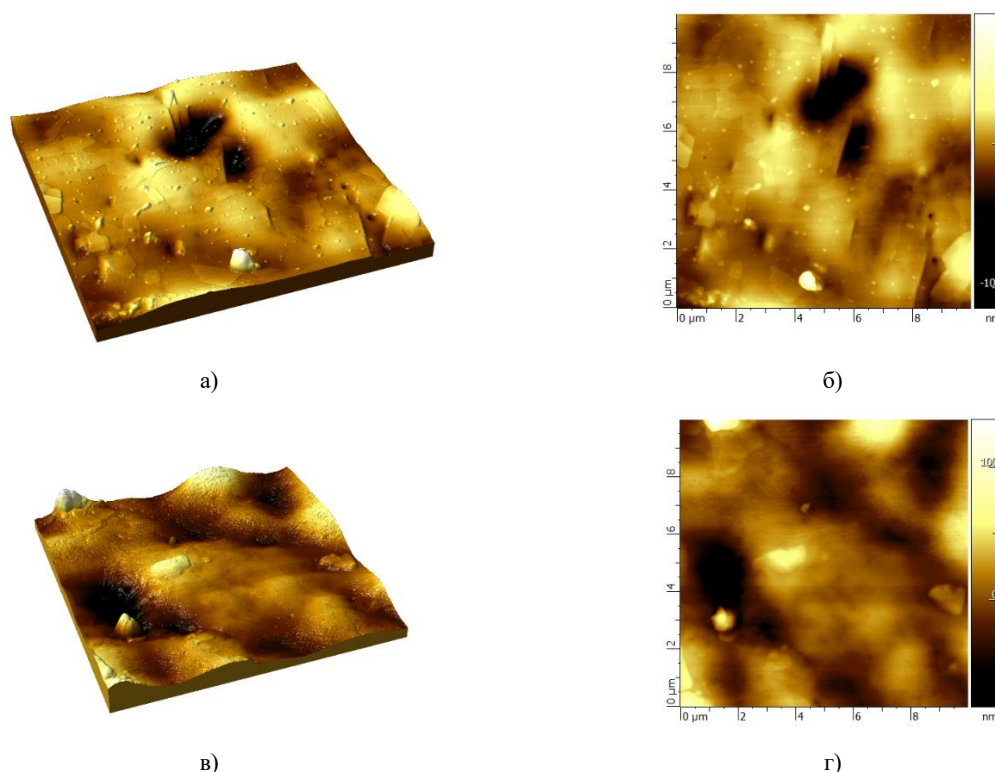


Рисунок 5. АСМ снимки кристаллов CsI:Tl облученных ионами 230 МэВ ^{132}Xe до флюенса $1 \cdot 10^{13}$ ион/см² при 295 К в 3D формате (а) и в 2D (б; до флюенса $1 \cdot 10^{14}$ ион/см² в 3D формате (в) и в 2D (г)

Таблица 3. Оптические характеристики электронных возбуждений в монокристаллах CsI при 4,2 К [56]

E_g (эВ)	E_{ex} (эВ)	$E_{max}(\pi, \sigma)$ (эВ)/(нм)	$FWHM$ (π, σ) (эВ)	Поляризация	τ (с)	S_R^0	Конфигурация АЛЭ
6,4	5,81	3,68/337 4,27/290	0,51 –	π σ	$1,8 \cdot 10^{-6}$ –	0,367 0,265	слабое центровое смещение, центровое положение

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе исследовались особенности люминесценции монокристаллов CsI:Tl, облученного ионами 230 МэВ ^{132}Xe до флюенсов ($1 \cdot 10^{11}$ – $1 \cdot 10^{14}$ ион/см²) при 295 К. Установлено уменьшение интенсивности РЛ и светового выхода люминесценции 553 нм. Если исходный (необлученный) кристалл обладает световыходом в 100%, то при увеличении флюенса наблюдается значительное снижение световыхода. При флюенсе 10^{11} ионов/см² световыход снижается примерно до 75%, при флюенсе 10^{12} ионов/см² – до 55%, а при флюенсе 10^{13} ионов/см² световыход падает до 40%.

Конверсионная эффективность для исследованных образцов не зависит от флюенса. Это означает, что в сцинтилляционном импульсе, который регистрируется до и после ионного облучения, кристаллом CsI:Tl испускается одинаковое число фотонов, т. е. радиационное повреждение не влияет на конверсионную эффективность кристалла CsI:Tl. Формирование треков не снижают конверсионную эффективность кристалла CsI:Tl, но участвуют в сцинтилляционном

процессе, в виде реабсорбции энергии от Tl^+ -центров, что приводит к деградации светового выхода.

Данное исследование финансируется Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (Грант № AP14870572).

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Trefilova L. N. et al. Concentration dependence of the light yield and energy resolution of NaI: Tl and CsI: Tl crystals excited by gamma, soft X-rays and alpha particles // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2002. – Vol. 486. – No. 1–2. – P. 474–481. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)00756-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)00756-8)
2. Gramegna F., Abbondanno U., Andreano A., Bassini R., Bonutti F., Bruno M., Casini G., D'Agostino M., Manzini G., Margagliotti G.V., Mastinu P.F., Milazzo P.M., Moroni A., Squarcini M., Tonetto F., Vannini G., Vannucci L. A telescope with microstrip gas chambers for the detection of charged products in heavy-ion reactions // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated

- Equipment. – 1997. – Vol. 389. – No. 3. – P. 474–478. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(96\)01212-0](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)01212-0)
3. Zazubovich S. Physics of halide scintillators // *Radiation Measurements*. – 2001. – Vol. 33. – No. 5. – P. 699–704. [https://doi.org/10.1016/S1350-4487\(01\)00086-5](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(01)00086-5)
4. Popov A. I., Balanzat E. F centre production in CsI and CsI–TI crystals under Kr ion irradiation at 15 K // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2000. – Vol. 166. – P. 545–549. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00789-2](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00789-2)
5. Yakovlev V., Trefilova L., Alekseev V. [et al.] Influence of color centers on the luminescent response of radiation-damaged CsI:TI crystal // *Functional Materials*. 2018. – Vol. 25. – No. 1. – P. 13–20
6. Yakovlev V., Trefilova L., Lebedynskiy A. [et al.] Peculiarities of intrinsic luminescence excited by pulsed electron beam in CsI and CsI: CO₃ // *Journal of Luminescence*. – 2017. – Vol. 190. – P. 267–271
7. Ren Guo-Hao, Song Zhao-Hui, ZHANG Zi-Chuan, ZHANG Kan, Yang Fan, LI Huan-Ying, CHen Xiao-Feng. Luminescence and Decay Time Properties of Pure CsI Crystals[J] // *Journal of Inorganic Materials*. – 2017, – Vol. 32(2). – P. 169–174.
8. Sajjad Shahmaleki, Faezeh Rahmani. Investigation on the scintillation characteristics of CsI(Tl) crystal with Eu dopant: Monte Carlo simulation using GATE code and experimental results // *Optik*. – Vol. 201. – 2020. – P. 163492
9. A. Knyazev, J. Park, P. Golubev, J. Cederkäll, et al. Simulations of light collection in long tapered CsI (TI) scintillators using real crystal surface data and comparisons to measurement // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – Vol. 1003. – 2021. – P. 165302
10. Suzart K.F. et al. Suzart K.F., Velo, A.F., Hamada M. M., Pereira M.C.C., Mesquita C.H. Characterization of the CsI(Tl) Crystalline Scintillating Detector Produced at IPEBraz // *J. Rad. Sci.* – Vol. 09-01A. – 2021. – P. 01–13
11. Amolo G. O., Erasmus R.M., Comins J.D., Derry T.E. Raman and optical absorption studies of proton bombarded CsI // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2006. – Vol. 250. – No. 1–2. – P. 359–362. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2006.04.169>
12. Chowdhury M., Watts S.J., Imrie D.C., McKemey A.K., Holmes-Siedle A.G. Studies of radiation tolerance and optical absorption bands of CsI (TI) crystals // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – 1999. – Vol. 432. – No. 1. – P. 147–156. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(99\)00471-4](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)00471-4)
13. Hamada M. M. et al. Radiation damage of CsI (TI) scintillators: blocking of energy transfer process of Vk centers to TI+ activators // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – 2002. – Vol. 486. – No. 1–2. – P. 330–335. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)00729-5](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)00729-5)
14. Quaranta A. Recent developments of ion beam induced luminescence: radiation hardness study of thin film plastic scintillators // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2005. – Vol. 240. – No. 1–2. – P. 117–123. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2005.06.098>
15. Brecher C., Lempicki A., Miller S.R., Glodo J., Ovechkina E.E., Gaysinskiy V., Nagarkar V.V., Bartram R.H. Suppression of afterglow in CsI: TI by codoping with Eu²⁺—I: Experimental // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – 2006. – Vol. 558. – No. 2. – P. 450–457. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.11.119>
16. Fujiwara M. et al. Ion-induced luminescence of silica glasses // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 1996. – Vol. 116. – No. 1–4. – P. 536–541. [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(96\)00103-6](https://doi.org/10.1016/0168-583X(96)00103-6)
17. Ishii M., Kobayashi M. Single crystals for radiation detectors // *Progress in crystal growth and characterization of materials*. – 1992. – V. 23. – P. 245–311. [https://doi.org/10.1016/0960-8974\(92\)90025-L](https://doi.org/10.1016/0960-8974(92)90025-L)
18. Agulló-López F. et al. Spectroscopic techniques to investigate aggregation and precipitation of cation impurities in alkali halides: application to impurity hardening and irradiation sensitivity // *Progress in Materials Science*. – 1986. – Vol. 30. – No. 4. – P. 187–286.
19. Johnson R. A., Orlov A. N. (ed.). *Physics of radiation effects in crystals*. – Elsevier, 2012. ISBN: 9780444568038 Elsevier Science Publishers B.V., 1986. – Vol. 13. – P. 723.
20. Itoh N., Tanimura K. Formation of interstitial-vacancy pairs by electronic excitation in pure ionic crystals // *Journal of Physics and Chemistry of Solids*. – 1990. – P. 51. – No. 7. – P. 717–735. [https://doi.org/10.1016/0022-3697\(90\)90145-6](https://doi.org/10.1016/0022-3697(90)90145-6)
21. Bobbink G. J. et al. Study of radiation damage to long BGO crystals // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – 1984. – Vol. 227. – No. 3. – P. 470–477. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(84\)90203-1](https://doi.org/10.1016/0168-9002(84)90203-1)
22. Dauletbekova A., Elango A. Conversion of F-HA Pairs into α-IA Pairs in KBr: Li and KBr: Na X-Rayed at 80 K // *Physica Status Solidi (b)*. – 1981. – Vol. 108. – No. 2. – P. 299–305. <https://doi.org/10.1002/pssb.2221080202>
23. Agulló-López F. et al. Spectroscopic techniques to investigate aggregation and precipitation of cation impurities in alkali halides: application to impurity hardening and irradiation sensitivity // *Progress in Materials Science*. – 1986. – Vol. 30. – No. 4. – P. 187–286. [https://doi.org/10.1016/0079-6425\(86\)90006-X](https://doi.org/10.1016/0079-6425(86)90006-X)
24. Johnson R. A., Orlov A. N. (ed.). *Physics of radiation effects in crystals*. – Elsevier, 2012. ISBN: 9780444568038 Elsevier Science Publishers B.V., 1986. – Vol. 13. – P. 723.
25. Itoh N., Tanimura K. Formation of interstitial-vacancy pairs by electronic excitation in pure ionic crystals // *Journal of Physics and Chemistry of Solids*. – 1990. – V. 51. – №. 7. – P. 717–735. [https://doi.org/10.1016/0022-3697\(90\)90145-6](https://doi.org/10.1016/0022-3697(90)90145-6)
26. Bobbink G. J. et al. Study of radiation damage to long BGO crystals // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – 1984. – Vol. 227. – No. 3. – P. 470–477. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(84\)90203-1](https://doi.org/10.1016/0168-9002(84)90203-1)

27. Bieler C. et al. Radiation damage of BGO and CsI (Tl) crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1985. – Vol. 234. – No. 3. – P. 435–442. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(85\)90988-X](https://doi.org/10.1016/0168-9002(85)90988-X)
28. Schlögl S., Spitzer H., Wittenburg K. Radiation damage of CsI (Tl) crystals in a long term exposure at PETRA // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1985. – Vol. 242. – No. 1. – P. 89–94. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(85\)90891-5](https://doi.org/10.1016/0168-9002(85)90891-5)
29. Kobayashi M., Sakuragi S. Radiation damage of CsI (Tl) crystals above 103 rad // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1987. – Vol. 254. – No. 2. – P. 275–280. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(87\)90675-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(87)90675-9)
30. Woody C. L. et al. Readout techniques and radiation damage of undoped cesium iodide // IEEE Transactions on Nuclear Science. – 1990. – Vol. 37. – No. 2. – P. 492–499. <https://doi.org/10.1109/23.106667>
31. Woody C. L. et al. Radiation damage in undoped CsI and CsI (Tl) // IEEE transactions on nuclear science. – 1992. – Vol. 39. – No. 4. – P. 524–531. <https://doi.org/10.1109/23.159659>
32. Kobayashi M. et al. Radiation hardness of undoped CsI crystals against high energy protons // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1993. – Vol. 328. – No. 3. – P. 501–505. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(93\)90666-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90666-6)
33. Wei Z., Zhu R. A study on undoped CsI crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1993. – Vol. 326. – No. 3. – P. 508–512. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(93\)90852-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90852-9)
34. Kobayashi M., Sakuragi S. Radiation damage of CsI (Tl) crystals above 103 rad // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1987. – Vol. 254. – No. 2. – P. 275–280. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(87\)90675-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(87)90675-9)
35. Bobbink G. J. et al. Study of radiation damage to long BGO crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1984. – Vol. 227. – No. 3. – P. 470–477. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(84\)90203-1](https://doi.org/10.1016/0168-9002(84)90203-1)
36. Kobayashi M., Sakuragi S. Radiation damage of CsI (Tl) crystals above 103 rad // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1987. – Vol. 254. – No. 2. – P. 275–280. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(87\)90675-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(87)90675-9)
37. Woody C. L. et al. Readout techniques and radiation damage of undoped cesium iodide // IEEE Transactions on Nuclear Science. – 1990. – Vol. 37. – No. 2. – P. 492–499. <https://doi.org/10.1109/23.106667>
38. Woody C. L. et al. Radiation damage in undoped CsI and CsI (Tl) // IEEE transactions on nuclear science. – 1992. – Vol. 39. – No. 4. – P. 524–531. <https://doi.org/10.1109/23.159659>
39. Kobayashi M. et al. Radiation hardness of undoped CsI crystals against high energy protons // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1993. – Vol. 328. – No. 3. – P. 501–505. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(93\)90666-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90666-6)
40. Wei Z., Zhu R. A study on undoped CsI crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1993. – Vol. 326. – No. 3. – P. 508–512. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(93\)90852-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90852-9)
41. Bieler C. et al. Radiation damage of BGO and CsI (Tl) crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1985. – Vol. 234. – No. 3. – P. 435–442. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(85\)90988-X](https://doi.org/10.1016/0168-9002(85)90988-X)
42. Kobayashi M. et al. Radiation hardness of undoped CsI crystals against high energy protons // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1993. – Vol. 328. – No. 3. – P. 501–505. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(93\)90666-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90666-6)
43. Popov A. I., Balanzat E. F centre production in CsI and CsI–Tl crystals under Kr ion irradiation at 15 K // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2000. – Vol. 166. – P. 545–549. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00789-2](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00789-2)
44. Quaranta A. et al. Radiation damage mechanisms in CsI (Tl) studied by ion beam induced luminescence // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2008. – Vol. 266. – No. 12–13. – P. 2723–2728. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2008.03.195>
45. Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P. SRIM–The stopping and range of ions in matter (2010) // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2010. – Vol. 268. – No. 11–12. – P. 1818–1823.
46. Popov A. I., Balanzat E. F centre production in CsI and CsI–Tl crystals under Kr ion irradiation at 15 K // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2000. – Vol. 166. – P. 545–549. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00789-2](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00789-2)
47. Globus M. E., Grinyov B. V. On the mechanism of gamma-irradiation induced changes in the conversion efficiency of CsI (Tl) scintillators // Functional materials. – 1996. – Vol. 3. – No. 2. – P. 231–232. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2007.02.034>
48. Ratner M., Grinyov B., Ratner A. Manifestations of charged lattice defects in excitonic luminescence and control over properties of wide-band scintillation crystals // Radiation measurements. – 2004. – Vol. 38. – No. 4–6. – P. 627–632. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2004.02.001>
49. Hamada M. M. et al. Radiation damage of CsI (Tl) scintillators: blocking of energy transfer process of V_k centers to Tl⁺ activators // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2002. – Vol. 486. – No. 1–2. – P. 330–335. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)00729-5](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)00729-5)

50. Shpilinskaya L. N. et al. Radiation damage factors of CsI (TI) crystals. – 2000.
51. Beylin D. M. et al. Study of the radiation hardness of CsI (TI) scintillation crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2005. – Vol. 541. – No. 3. – P. 501–515. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2004.11.023>
52. Chowdhury M. A. H. et al. Studies of radiation tolerance and optical absorption bands of CsI (TI) crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1999. – Vol. 432. – No. 1. – P. 147–156. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(99\)00471-4](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)00471-4)
53. Zhu R. Radiation damage in scintillating crystals // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1998. – Vol. 413. – No. 2–3. – P. 297–311. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(98\)00498-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00498-7)
54. Longo S., Roney J. M. Radiation hardness of 30 cm long CsI (TI) crystals // Journal of Instrumentation. – 2016. – Vol. 11. – No. 08. – P. P08017. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/11/08/P08017>
55. Globus M. E., Grinyov B. V. On the mechanism of gamma-irradiation induced changes in the conversion efficiency of CsI(Tl) scintillators // Functional materials. – 1996. – Vol. 3. – No. 2. – P. 231–232.
56. Wu Z., Yang B., Townsend P. D. Radioluminescence and thermoluminescence properties of X-ray-irradiated pure CsI // Journal of luminescence. – 2008. – Vol. 128. – No. 7. – P. 1191–1196. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2007.11.091>
57. Kan'no K., Tanaka K., Hayashi T. New aspects of intrinsic luminescence in alkali halides // Atomic Processes Induced By Electronic Excitation In Non-Metallic Solids- Proceedings Of The Us-japan Seminar. – World Scientific, 1990. – P. 253. <https://doi.org/10.1142/9789814540872>

ЖЫЛДАМ Хе ИОНДАРМЕН СӘУЛЕЛЕНГЕН CsI:TI КРИСТАЛДАРЫНЫҢ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ЕРЕКШЕЛІКТЕРІ

А. Т. Акилбеков¹, Г. М. Баубекова¹, Р. Н. Асылбаев², А. К. Даулетбекова¹,
Г. М. Аралбаева^{1*}, Ж. Т. Карипбаев¹, К. Бурканова¹

¹⁾ Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті КеАҚ, Астана, Қазақстан

²⁾ Мәргұлан университеті, Павлодар, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: agm_555@mail.ru

Сцинтилляциялық CsI:TI кристалдары ядролық физика және жоғары энергиялар физикасы бойынша эксперименттерде кеңінен қолданылады. Бұл жұмыста CsI:TI кристалдарының люминесценция қасиеттері зерттеліп, талданды, олар 230 МэВ ¹³²Xe иондарымен сәулелену нәтижесінде ($1 \cdot 10^{11}$ – $1 \cdot 10^{14}$ ион/см² флюенстері кезінде) 295 К температурасында зерттелді (Астана қаласындағы ДЦ-60 үдеткіші). Зерттеу оптикалық абсорбция және люминесценция спектроскопиясы әдістерімен, сондай-ақ уақытпен шешілетін оптикалық стимулденген люминесценция әдісімен жүргізілді. Беткі қабаты атом-күштік микроскопия көмегімен зерттелді. Сцинтилляциялық 553 нм толқын ұзындығындағы жарық шығару интенсивтілігінің және оның жарық шығу коэффициентінің флюенс ұлғаюымен төмендегені анықталды. Зерттелген үлгілердің конверсиялық тиімділігі флюенске тәуелсіз. Демек, радиациялық зақымдану CsI:TI кристалының конверсиялық тиімділігіне әсер етпейді. Тректердің түзілуі CsI:TI кристалының конверсиялық тиімділігін төмендетпейді, бірақ сцинтилляциялық процеске қатысады, TI⁺ орталықтарынан энергияның қайта жұтылуы арқылы, бұл жарық шығудың төмендеуіне әкеледі.

Түйін сөздер: CsI монокристалы, сцинтилляциялық люминесценция, иондық сәулелену, жарық шығу, конверсиялық тиімділік, иондық тректер.

LUMINESCENCE FEATURES OF CsI:Tl CRYSTALS IRRADIATED WITH FAST Xe IONS

A. T. Akilbekov¹, G. M. Baubekova¹, R. N. Asylbaev², A. K. Dauletbekova¹,
G. M. Aralbayeva^{1*}, Zh. T. Karipbayev¹, K. Burkanova¹

¹⁾ L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan

²⁾ Margulan University, Pavlodar, Kazakhstan

* E-mail for contacts: agm_555@mail.ru

Scintillation crystals CsI are widely used in nuclear physics and high-energy physics experiments. This work presents the study and analysis of luminescent properties of CsI:Tl crystals induced by irradiation with 230 MeV ¹³²Xe ions up to fluences ($1 \cdot 10^{11}$ – $1 \cdot 10^{14}$ ions/cm²) at 295 K (DC-60 accelerator, Astana, Kazakhstan). The research was conducted using optical absorption and luminescence spectroscopy methods, as well as time-resolved optically stimulated luminescence. The surface was studied using atomic force microscopy. A decrease in the intensity of the scintillation emission band at 553 nm and its light yield with increasing fluence was established. The conversion efficiency of the studied samples does not depend on fluence. Therefore, radiation damage does not affect the conversion efficiency of the CsI:Tl crystal. Track formation does not reduce the conversion efficiency of the CsI:Tl crystal but participates in the scintillation process through energy reabsorption from Tl⁺ centers, leading to light yield degradation.

Keywords: CsI single crystal, scintillation luminescence, ion irradiation, light yield, conversion efficiency, ion tracks.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-21-35>

УДК 574.24

ЭФФЕКТИВНОСТЬ БИОРЕМЕДИАЦИИ ПОЧВЫ, ЗАГРЯЗНЕННОЙ НЕФТЕПРОДУКТАМИ, В КОНТЕКСТЕ ЭКОЛОГИЧЕСКОГО ТУРИЗМА

Г. А. Онерхан^{1*}, Е. Б. Баделгажы², Б. А. Капсалямов², З. К. Кыстаубаева³, Е. Т. Сыздыков⁴

¹⁾ *Казахский университет технологии и бизнеса, Астана, Казахстан*

²⁾ *Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан*

³⁾ *Медицинский университет Астана, Астана, Казахстан*

⁴⁾ *Кокшетауский университет им. Ш. Уалиханова, Кокшетау, Казахстан*

* E-mail для контактов: kapsalyamov_ba@enu.kz

Статья посвящена исследованию методов очистки почв, загрязненных нефтепродуктами в процессе экологического туризма, с целью сохранения природной среды. Для очистки почв был использован биопрепарат «Бакойл-KZ», созданный на основе гидрокарбонокисляющих микроорганизмов. Применение этого препарата увеличило степень очистки почв от нефтепродуктов с 67,8% до 97,2%, причем наиболее эффективной дозировкой оказалось 2 г/кг. Морфологический анализ и биотестирование с использованием ростков водяного кресса показали отсутствие токсичных свойств в очищенной почве. В экспериментах с добавлением «Бакойл-KZ» (1 г/кг и 5 г/кг) проросло соответственно 84–82% и 88–90% семян, что свидетельствует о очистке почв. В загрязненной почве без добавления биопрепарата проросло всего 19–23 экземпляра семян (38–46%), что указывает на медленный процесс самоочищения. Использование «Бакойл-KZ» экологически безопасно, предотвращает экологические катастрофы, требует меньше ресурсов и позволяет очищать земельные участки различных масштабов без ущерба для экосистемы. Это делает препарат эффективным инструментом для восстановления почв в туристически активных зонах. Эффективное управление исключения загрязнения почв и использование современных методов очистки, таких как биопрепарат «Бакойл-KZ», играют ключевую роль в сохранении первозданной природы уникальных природных зон. Внедрение устойчивых туристических практик и технологий поможет минимизировать негативное воздействие на окружающую среду и способствует сохранению биоразнообразия и экосистем.

Ключевые слова: нефтепродукты, бензин, дизельное топливо, биоремедиация, биотестирование, «Бакойл-KZ», почва, загрязнение.

ВВЕДЕНИЕ

Туризм является значительным фактором, влияющим на окружающую среду, особенно в контексте загрязнения почв выбросами нефтепродуктов от автотранспорта. Исследования показывают, что туристический транспорт, особенно автомобили, вносит существенный вклад в атмосферные выбросы углеводородов, которые затем могут накапливаться и трансформироваться в почвенной среде [1]. Эти нефтепродукты могут оказывать токсичное воздействие на почвенную биоту и фауну, а также приводить к длительному загрязнению почвы, снижая её фертильность и способность к самоочищению [2]. Уникальная природа в Алтайском крае, привлекает своей красотой ежегодно множество туристов. Увеличение числа туристов в этом регионе сопровождается значительным увеличением транспортных потоков, особенно автомобилей. Исследования показывают, что автомобили вносят существенный вклад в загрязнение почв нефтепродуктами через выхлопные газы и вероятные их разливы, которые содержат углеводороды и другие токсичные вещества [3, 4].

Загрязнение почвы и её деградация при транспортном туризме происходит вследствие поломки или аварии транспорта, его несоответствия требованиям ГОСТ, утечек горюче-смазочных материалов и других

факторов. Если концентрация нефтепродуктов в почве увеличивается, живые организмы и растения подвергаются негативному воздействию, что приводит к деградации растительного покрова и загрязнению почвы. Вследствие этого снижается плодородие почвы, её продуктивность и почвенная функция, изменяются структура и свойства почвы [5, 6].

Очистка нефтезагрязненных почв и восстановление их плодородия являются приоритетными задачами. Наиболее прогрессивным методом восстановления считается метод биоремедиации, так как использование биотехнологических ресурсов, в частности, почвенно-деструкторных микроорганизмов, весьма актуально в настоящее время [7–9]. Этот метод позволяет эффективно разлагать нефтепродукты в почве, восстанавливая её экосистемные функции. С нефтепродуктами почва часто загрязняется из-за разливов горюче-смазочных материалов, которые происходят при дорожно-транспортных происшествиях или поломках транспортных средств [10, 11]. В таких случаях нефтепродукты проникают в почву, вызывая её деградацию.

Обзор последних литературных источников показывает эффективность биопрепарата «Бакойл-KZ», разработанного для биологической рекультивации нефтезагрязненных почв. Вот некоторые ключевые

характеристики этого препарата: «Бакойл-KZ» содержит углеводородокисляющие микроорганизмы, которые эффективно окисляют углеводороды нефти при различных условиях (рН 5,5–9,5 и температуре от +10 до +40 °С). Препарат снижает токсичность нефтезагрязненной почвы, способствует ее восстановлению и не оказывает вредного воздействия на другие экосистемы. Прост в применении: наносится на загрязненную почву методом дождевания или распыления. Биопрепарат, разработан для очистки почв, загрязненных нефтепродуктами. Основными активными компонентами этого препарата являются специфические штаммы микроорганизмов, такие как *Acinetobacter calcoaceticus*, *Microbacterium lacticum*, и *Arthrobacter terregens*. Эти микроорганизмы обладают высокой нефтеокисляющей активностью, что позволяет им эффективно разлагать углеводороды, присутствующие в нефтепродуктах. В исследовании [12] подчеркивается высокая нефтеокисляющая активность «Бакойл-KZ». Препарат показал значительное снижение содержания нефтепродуктов в почве, подтверждая его эффективность в биоремедиации. Исследование [13] демонстрирует, что оптимальная дозировка «Бакойл-KZ» составляет 2 г/кг, что обеспечивает наилучшие результаты по разложению нефтепродуктов. Применение меньших доз показало менее эффективные результаты, а избыточные дозы привели к снижению эффективности. Авторы [14] исследовали два биопрепарата: «Бакойл-KZ» и «Мико». Результаты показали, что «Бакойл-KZ» продемонстрировал более высокую эффективность в разложении нефтепродуктов и положительное влияние на восстановление почвенной микрофлоры. Исследование [15] подтвердило, что «Бакойл-KZ» в дозировке 2 г/кг является наиболее эффективным для разложения нефтепродуктов и улучшения физических и химических свойств почвы. В статье [16] описывается значимость «Бакойл-KZ» для экологического восстановления загрязненных территорий и его высокая эффективность в биоремедиации почв. В целом авторы отмечают положительные стороны биопрепарата «Бакойл-KZ», заключающиеся в эффективности разложения углеводородов, присутствующих в нефтепродуктах. Препарат содержит микроорганизмы, которые являются безопасными для окружающей среды и способствуют восстановлению почвенной микрофлоры. Применение «Бакойл-KZ» способствует улучшению структуры и состава почвы, что положительно сказывается на ее плодородии. Препарат может быть использован для очистки почв, загрязненных различными видами нефтепродуктов, включая бензин и дизельное топливо.

Целью испытаний является сохранение уникальной первозданной природы заповедных зон на примере Алтайского региона, снижение воздействия нефтезагрязнений и восстановление экосистем, а также разработка модели биоремедиации почв, загрязненных нефтепродуктами, и оценка качества почв после про-

ведения биотестирования. Это позволит определить эффективность методов очистки и разработать рекомендации по восстановлению плодородия почвы в зонах с высоким туристическим транспортом

МЕТОДЫ И МАТЕРИАЛЫ

На первом этапе исследований изучалось состояние горных участков, загрязненных нефтепродуктами. Для этого почвенные пробы отбирались как с загрязненных нефтепродуктами участков, так и с чистых участков для контроля. Пробы отбирались с глубины 0–10 см с использованием гигиенического оборудования для предотвращения перекрестного загрязнения. В каждой точке отбора отбирали по 3–5 проб, которые затем смешивались для получения репрезентативного образца.

Почву высушивали при комнатной температуре, удаляли крупные органические остатки и просеивали через сито с размером ячеек 2 мм. Для химического анализа брали необходимое количество подготовленной почвы и проводили экстракцию целевых соединений. Перед проведением анализа пробы гомогенизировались.

В лабораторных условиях анализы проб осуществлялись различными методами. Для определения элементной серы пробы почвы разлагались в кислотной среде, после чего измерялось содержание серы с помощью инфракрасного спектрометра. Для определения фтора пробы экстрагировали водой и анализировали с использованием иономера для определения заряда фторид-ионов. Металлы (медь, хром, марганец, ртуть, свинец, цинк, кобальт, кадмий, никель, мышьяк) выявлялись методом атомно-абсорбционной спектроскопии (ААС). Пробы почвы подвергались кислотному разложению с использованием смесей азотной и соляной кислот, затем фильтровались и анализировались на содержание металлов с помощью ААС-спектрометра. Отдельные пробы почвы экстрагировались органическим растворителем (гексаном), затем экстракт концентрировался и анализировался с помощью газового хроматографа на содержание ксилолов (орто-, мета-, пара-). Бенз(а)пирен определялся экстракцией из проб почвы органическим растворителем, где экстракт концентрировался и анализировался. Формальдегид экстрагировался водой и определялся колориметрическим методом с использованием спектрофотометра при длине волны 410 нм.

Для изучения механизма очистки горных почв от нефтепродуктов в лабораторных условиях готовились образцы почвы, которые специально смешивали с бензином и дизельным топливом в количестве 50 г/кг. Использовалось бензиновое топливо – неэтилированное автотранспортное АИ-92 и летнее дизельное топливо.

Для выяснения механизма очищения почвы, загрязненной нефтепродуктами под воздействием микроорганизмов, в образцы почвы внедряли биопрепарат «Бакойл-KZ» в количестве 1 г/кг, 2 г/кг и 5 г/кг.

Этот препарат для микробиологической очистки почвы на основе окисляющих микроорганизмов выпускается в виде пасты и содержит *Acinetobacter calcoaceticus* 2A, *Mixrobacterium lacticum* 41-3, *Arthrobacter terregens*, штаммы P1 и *Misgosossis roseus* 49 [17].

Внесение препарата «Бакойл-KZ» в почву проводилось следующим образом. Препарат «Бакойл-KZ», представленный в виде пасты, растворяли в воде. Необходимое количество пасты добавляли в воду и тщательно перемешивали до получения однородного раствора. Подготовленный раствор равномерно наносили на поверхность почвы. После нанесения раствора почву тщательно перемешивали для обеспечения равномерного распределения препарата. Обработанные пробы почвы тщательно перемешивались для обеспечения однородности. Загрязненные и обработанные биопрепаратом пробы помещались в лабораторные условия с контролируемой температурой и влажностью. Эксперимент длился 30 суток, в течение которых почва периодически увлажнялась для поддержания постоянной влажности.

Дальнейшая экстракция углеводов из обработанных почв производилась следующим образом. Около 10 г почвы помещалось в стеклянный контейнер и добавлялось 50 мл гексана. Смесь встряхивалась в течение 1 часа для экстракции углеводов. Далее она фильтровалась через бумажный фильтр для отделения почвы от экстракта. Экстракт упаривался до небольшого объема (около 1 мл) при низкой температуре для удаления гексана. Концентрированный экстракт анализировался методом газовой хроматографии (ГХ) с использованием хроматографа Agilent 7890A, оснащенного детектором пламени-ионизации (FID). Проба вводилась в хроматограф, где происходило разделение компонентов смеси. Содержание бензина и дизельного топлива определялось по площади пиков на хроматограмме, сопоставляемой с калибровочными стандартами. Результаты выражались в процентах от исходного содержания углеводов в почве, рассчитываемых на основе сравнения с контрольными образцами.

Для моделирования процессов биодеградаций использовали комбинацию программных средств и ручных расчетов. Программный комплекс Microsoft Excel применялся для обработки экспериментальных данных, построения графиков и выполнения статистического анализа. Для расчета степени деструкции использовались формулы, учитывающие начальную и конечную концентрации углеводов в почве.

Основной формулой было определение степени деструкции углеводов, рассчитываемой на основе изменения концентрации углеводов в почве до и после обработки методом газовой хроматографии. Расчет осуществлялся по формуле:

$$n = \left(\frac{C_n - C_k}{C_n} \right) \cdot 100,$$

где n – степень деструкции, %; C_n – начальная концентрация; C_k – конечная концентрация.

Для экологической оценки почвы, очищенной от нефтепродуктов, было проведено биотестирование с использованием кресс-салата (*Lepidium sativum*) [18]. Работа проводилась с использованием теоретических, аналитических и лабораторно-исследовательских методов [19–21].

В процессе исследовательской работы, нами были проведены химические анализы плодородного чернозема и чистой горной земли без нефтепродуктов и загрязненной ими. Были использованы следующие методы анализа. Гравиметрический метод для определения содержания общего углерода и углеводов в почве. Этот метод позволяет точно измерить массу остатка после испарения и прокаливании, что важно для оценки углеводородного загрязнения [22]. Газовая хроматография широко используется для анализа сложных смесей, таких как почвенные экстракты, содержащие углеводороды [23]. Спектрофотометрия – определение концентрации тяжелых металлов и других токсичных веществ. Метод позволяет определить наличие и концентрацию различных элементов в почве путем измерения поглощения света при определенных длинах волн [24]. Биотестирование для использования ростков водяного кресса для оценки фитотоксичности почвы. [25]. Почвенные тесты для оценки pH, электропроводности и других физических и химических свойств почвы. Все эти тесты помогают определить основные физико-химические параметры почвы, которые важны для понимания её состояния и степени загрязнения [26–31].

ОБСУЖДЕНИЕ И РЕЗУЛЬТАТЫ

В таблице 1 представлены предельные концентрации химических веществ в почве (ПДК) и химические показатели почвы, взятые для анализа из района загрязнения и их вероятное негативное влияние на окружающую среду. Пробы отбирали в Монгольском Алтае, в районе дороги, при подъеме на гору Беш Бо-гда.

Анализ таблицы показывает, что в почве имеется значительное превышение ПДК для нескольких токсичных веществ, что требует применения эффективных методов очистки, таких как биоремедиация с использованием биопрепаратов. Эти данные подчеркивают необходимость дальнейших исследований и мониторинга состояния почвы для обеспечения экологической безопасности. Эти источники предоставляют обширную информацию о химических веществах, их влиянии на окружающую среду и здоровье человека, а также методах исследования и контроля за их концентрациями в почвах.

ЭФФЕКТИВНОСТЬ БИОРЕМЕДИАЦИИ ПОЧВЫ, ЗАГРЯЗНЕННОЙ НЕФТЕПРОДУКТАМИ, В КОНТЕКСТЕ ЭКОЛОГИЧЕСКОГО ТУРИЗМА

Таблица 1. Химические показатели почвы и предельно допустимая концентрация (ПДК) химических веществ в почве

№	Название вещества	Средняя концентрация	Превышение ПДК на	Примечания
1	Элементарная сера	173	10,81	Высокие концентрации серы могут привести к закислению при наличии влаги, что негативно влияет на почву и растительность [32]
2	Фтор	3,5	1,25	Фтор может вызвать флюороз у животных и растений, нарушая их нормальное развитие [33]
3	Медь	4,1	1,37	Медь может ингибировать рост растений и микробиологическую активность в почве [34]
4	Хром	6,9	1,15	Хром VI может проникать в растения, вызывая мутационные изменения и снижая их продуктивность [35]
5	Марганец	1580	1,05	Марганец в высоких концентрациях может быть токсичен для растений, вызывая хлороз и некроз листьев [36]
6	Ртуть	2,4	1,14	Ртуть может накапливаться в пищевых цепях, вызывая тяжелые отравления [37]
7	Свинец	35	1,09	Свинец может вызывать когнитивные нарушения и задержку развития у детей, а также поражать нервную систему взрослых [38]
8	Цинк	18	0,78	Цинк является важным микроэлементом для растений, однако его избыточное количество может быть токсичным [39]
9	Кобальт	2,7	0,54	Кобальт в почве необходим для роста некоторых растений, но его высокие концентрации могут быть токсичными [40]
10	Кадмий	0,7	1,4	Кадмий накапливается в органах и тканях, вызывая хронические заболевания [41]
11	Никель	4,5	1,13	Никель может вызывать аллергические реакции и нарушения функции дыхательной системы [42]
12	Ксилолы (орто-, мета-, пара-)	0,001	0,003	Ксилолы могут вызывать раздражение кожи и дыхательных путей при высоких концентрациях [43]
13	Бенз(а)пирен	0,03	1,5	Бенз(а)пирен, входящий в состав ПАУ, является мощным канцерогеном, вызывающим опухоли при длительном воздействии [44]
14	Мышьяк	2,1	1,05	Мышьяк может накапливаться в организме, вызывая хронические заболевания и рак [45]
15	Формальдегид	7,5	1,07	Формальдегид является сильным раздражителем, вызывающим аллергические реакции и заболевания дыхательных путей [46]

Таблица 2. Результаты обработки почвы, загрязненной бензином, биопрепаратами

№	Пробы	Начальное количество, %	Содержание в результате эксперимента, %	Степень деструкции бензина, %
1	Контроль: почва + бензин	5	3,02	39,6
2	почва + бензин + Бакойл-KZ (1 г/кг)	5	1,26	74,8
3	почва + бензин + Бакойл-KZ (2 г/кг)	5	0,14	97,2
4	почва + бензин + Бакойл-KZ (5 г/кг)	5	0,18	83

В ходе дальнейшего исследования в лабораторных условиях, была проанализирована эффективность биопрепарата «Бакойл-KZ» в очистке почв, загрязненных нефтепродуктами. Исследование включало оценку химических и биологических свойств почвы, а также ее реакции на внесение различных доз биопрепарата. В рамках исследования проводился анализ чистой плодородной темно-коричневой почвы, не содержащей нефтепродуктов, и тяжелых металлов, вероятно поступающих при загрязнении и которые могли бы негативно повлиять на почвенную экосистему.

Незагрязненная почва имела кислотность pH=7,1 и содержание гумуса 9%, что соответствует показателям плодородной почвы

В исследуемой группе почв не обнаружено нефтепродуктов, а также тяжелых металлов, влияющих на почвенную экосистему.

При добавлении биопрепарата «Бакойл-KZ» в загрязненную почву, отобранных для лабораторного анализа, были исследованы его влияние на очистку

почвы от нефтепродуктов и изменения биологических показателей почвы.

Исследование проводилось с трехкратным повторением в течение 30 суток, что позволило получить надежные и воспроизводимые результаты. Время, отведенное на исследование, было признано оптимальным на основе предыдущих работ других ученых, которые также изучали процессы биоремедиации почв [47, 48].

В таблице 2 представлены результаты биоремедиации почвы, загрязненной бензином.

Для оценки эффективности различных доз биопрепарата «Бакойл-KZ» и его аналогов были проведены исследования по очистке почв, загрязненных бензином и дизельным топливом.

Таблица демонстрирует, как различные концентрации биопрепарата «Бакойл-KZ» влияют на степень деструкции бензина в почве. Начальное содержание бензина было одинаковым во всех пробах (5%), а после обработки биопрепаратом произошло значительное снижение содержания бензина, что от-

ражается в высокой степени разложения, особенно при использовании более высоких концентраций биопрепарата. Анализ результатов исследования показал, что наибольший процесс очистки был достигнут при внесении биопрепарата «Бакойл-KZ» в дозировке 2 г/кг. В этом случае почва была очищена на 97,2% от нефтепродуктов. Внесение биопрепарата «Бакойл-RU» в дозировке 5 г/кг обеспечило очистку почвы на 83%, а применение «Бакойл-KZ» в дозировке 1 г/кг дало результат в 74,8% очистки. Таким образом, эффективность очистки почвы биопрепаратом «Бакойл-KZ» существенно зависит от дозировки. Оптимальная дозировка для достижения наибольшей степени очистки составляет 2 г/кг. Это подтверждает гипотезу о том, что количество вносимого в почву биопрепарата должно быть тщательно подобрано для достижения максимальной эффективности очистки. Результаты исследования демонстрируют высокую эффективность биопрепарата «Бакойл-KZ» в очистке почв, загрязненных нефтепродуктами. Дальнейшие исследования могут быть направлены на изучение долгосрочных эффектов использования биопрепаратов и их влияния на экосистемы. [49–54]

Деструкция бензина в почве при использовании биопрепарата «Бакойл-KZ» происходит благодаря активности микроорганизмов, входящих в состав препарата, которые обладают способностью метаболизировать углеводороды. Ароматические углеводороды, такие как бензин (содержащий бензол, толуол, ксилолы и другие), подвергаются биodeградации микроорганизмами, которые используют их в качестве источника углерода и энергии. Например, бактерии из рода *Pseudomonas* могут окислять бензол до бензойной кислоты, которая дальше разлагается до биогенных соединений. В присутствии кислорода и активных ферментов микроорганизмов происходит гидроксилирование бензина, что приводит к образованию гидроксибензольных соединений. Эти промежуточные продукты затем могут окисляться до более простых и малотоксичных соединений, таких как муравьиная и уксусная кислоты. В конечном итоге, микроорганизмы могут превращать углеводородные соединения в неорганические продукты, такие как углекислый газ (CO₂), вода и минеральные соли, которые могут быть включены в естественные биохимические циклы почвенной экосистемы.

Однако механизмы деструкции бензина могут различаться в зависимости от конкретных видов микроорганизмов, входящих в состав биопрепарата, и ус-

ловий окружающей среды (температура, влажность, доступность кислорода). Эти процессы основываются на биохимических путях, которые эффективно уменьшают содержание токсичных углеводородов в почве, способствуя её очистке и восстановлению естественной биологической активности. Гидрокарбонизирующие бактерии способны окислять углеводороды, включая бензин и его компоненты, используя их как источник углерода и энергии для своего метаболизма. Некоторые грибы также могут участвовать в биodeградации углеводородов, что делает их важными компонентами для биоремедиации загрязненных почв. Если рассматривать бактерии из рода *Pseudomonas*, входящие в состав биопрепарата «Бакойл-KZ», следует отметить, что они способны эффективно окислять бензин и его компоненты, такие как бензол. Они используют эти углеводороды в качестве источника углерода и энергии для своего метаболизма. Процесс начинается с окисления бензола до бензойной кислоты при участии ферментов и других биохимических механизмов, активизированных микроорганизмами *Pseudomonas*. Бензойная кислота в свою очередь может дальше разлагаться до более простых и биологически доступных соединений, таких как диоксины, фенолы и другие биогенные продукты, которые менее токсичны для окружающей среды. Присутствие бактерий *Pseudomonas* в биопрепарате «Бакойл-KZ» способствует эффективной биоремедиации почв, загрязненных бензином, путем разложения этого токсичного углеводорода на более безопасные компоненты, что способствует восстановлению экологического баланса и сохранению природной среды.

При изучении влияния микробиологического препарата на почву, загрязненную дизельным топливом, в лабораторных условиях наблюдалось снижение количества дизельного топлива в образцах почвы, содержащих биопрепарат, изготовленный на основе углеводородоксилирующих микроорганизмов (таблица 3).

Таблица отображает эффективность биоремедиации почвы, загрязненной дизельным топливом, при использовании различных концентраций биопрепарата «Бакойл-KZ». Высокие значения степени деструкции в пробах с биопрепаратом указывают на эффективность микроорганизмов в препарате в разложении дизельного топлива до менее токсичных или биологически доступных соединений, способствуя тем самым очистке загрязненных почв.

Таблица 3. Результаты обработки почвы, загрязненной дизельным топливом, биопрепаратами

№	Пробы	Начальное количество, %	Содержание в результате эксперимента, %	Степень деструкции дизельного топлива, %
1	Контроль: почва + дизельное топливо	5	3,67	30,6
2	почва + дизельное топливо + Бакойл-KZ (1 г/кг)	5	1,61	67,8
3	почва + дизельное топливо + Бакойл-KZ (2 г/кг)	5	0,23	95,4
4	почва + дизельное топливо + Бакойл-KZ (5 г/кг)	5	1,03	79,4

Наиболее эффективная очистка почвы, загрязненной дизтопливом, была достигнута при дозировке «Бакойл-KZ» 2 г/кг. В этом случае содержание диз. топлива в почве уменьшилось с 95,4% до 67,8%. Применение дозировки 5 г/кг обеспечило очистку почвы на 83%, тогда как дозировка 1 г/кг показала результат в 74,8% очистки. Контрольная группа продемонстрировала самоочищение почвы лишь на 30,6%.

Эти результаты подтверждают, что биопрепарат «Бакойл-KZ» значительно ускоряет процесс разложения нефтепродуктов в почве по сравнению с естественными процессами самоочищения. Это связано с активной деятельностью нефтеокисляющих микроорганизмов, входящих в состав препарата. Под их воздействием нефтепродукты трансформируются в более простые соединения, которые затем включаются в круговорот углерода.

Микроорганизмы, входящие в состав биопрепарата, способствуют интенсивному разложению нефтепродуктов, что делает этот метод перспективным для применения в биоремедиации загрязненных почв, отмеченное также подтверждается и другими подобными исследованиями.[55–59]. Как было замечено в горных условиях наиболее эффективной методикой для очистки нефтезагрязненных почв обычно является биоремедиация. Очевидно это объясняется несколькими факторами:

1) *Естественная среда для микроорганизмов:* Горные почвы могут обладать уникальной биоразнообразной микрофлорой, которая может быть адаптирована к разложению углеводородов. Это обеспечивает более высокую активность микроорганизмов в процессе биоремедиации.

2) *Меньшие механические воздействия:* В отличие от физических и химических методов, которые могут потребовать значительных механических воздействий (например, перемещение почвы), биоремедиация требует меньше вмешательства в естественные условия.

3) *Экологическая безопасность:* Биоремедиация использует естественные процессы разложения нефтепродуктов микроорганизмами без добавления химических соединений, что способствует сохранению экосистемы горных регионов.

4) *Адаптация к условиям:* Микроорганизмы, используемые в биоремедиации, могут быть адаптированы к специфическим условиям горных районов, таким как низкие температуры, высокая влажность или специфические составы почв.

Исходя из этих причин, биоремедиация видимо предпочтительна для очистки нефтезагрязненных почв в горных условиях, так как она сочетает высокую эффективность с минимальным воздействием на природные условия и экосистемы. На рисунке 1 представлено влияние биопрепарата на снижение загрязненности почвы.

В результате проведенных исследований отмечено снижение количества нефти в исследованных в лабораторных условиях образцах почвы, содержащих биопрепараты, изготовленные на основе углеводородокисляющих микроорганизмов. То есть интенсивность разложения нефтепродуктов в почве возросла. Так, за 30 суток очистки интенсивность разложения бензина и дизельного топлива в почве составила от 67,8% до 97,2%, тогда как в контрольном образце она составляла всего 30,6%. Деструкцию углеводородов в почве можно наблюдать на рисунке 2.

Исследование эффективности биопрепарата «Бакойл-KZ» для очистки нефтезагрязненных почв показало, что его эффективность зависит от дозировки. В частности, использование препарата в количестве 2–3 г/кг продемонстрировало высокую эффективность в разложении нефтепродуктов, таких как бензин и диз. топливо, на уровне 97,2% и 95,4% соответственно. Это свидетельствует о том, что оптимальная дозировка способствует более полному и быстрому разложению загрязнителей.

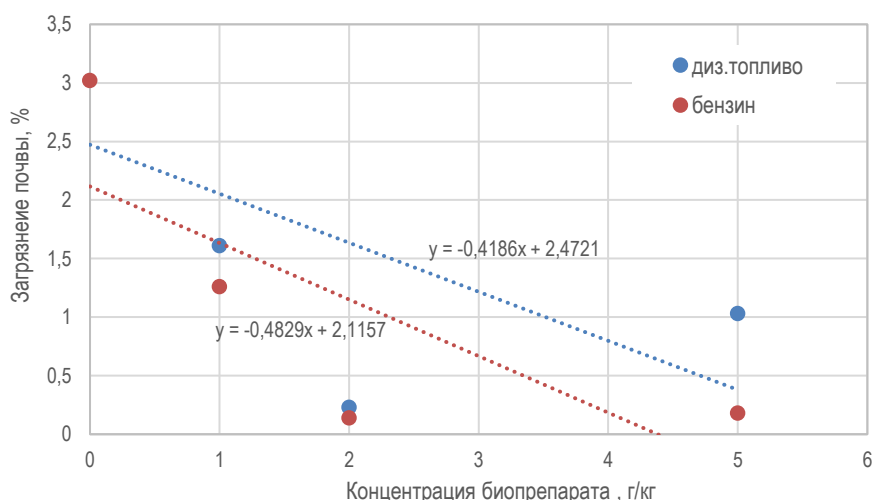


Рисунок 1. Влияние биопрепарата на снижение загрязненности почвы

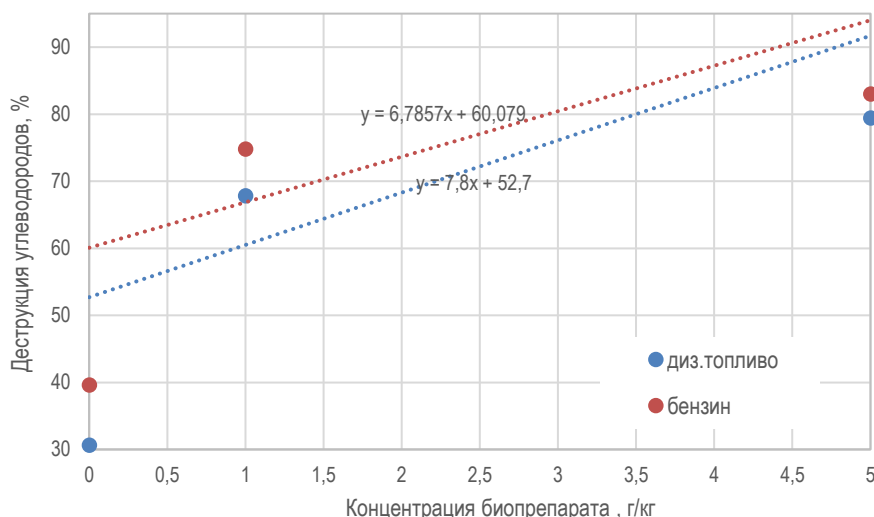


Рисунок 2. Влияние биопрепарата на деструкцию углеводородов в почве

С другой стороны, использование нижних доз (1 г/кг) не показало такой высокой эффективности, с разложением на уровне 74,8% для бензина и 67,8% для диз. топлива. Выявлено также, что чрезмерное количество препарата (5 г/кг) может привести к отрицательным последствиям для процесса очистки из-за снижения эффективности микроорганизмов, содержащихся в препарате.

Как видно биопрепарат «Бакойл-KZ» содержит микроорганизмы, способные разлагать углеводороды в почве, загрязненной нефтепродуктами.

Для бензина зависимость степени деструкции от концентрации биопрепарата (C) описывается функцией:

$$D_b = 6,7857 \cdot C + 60,079$$

Для дизельного топлива зависимость описывается следующей функцией:

$$D_d = 7,8 \cdot C + 52,7$$

Таким образом биопрепарат «Бакойл-KZ» эффективно ускоряет процесс деградации бензина и дизельного топлива в почве. Оптимальная концентрация биопрепарата составляет 2 г/кг, при которой достигаются наивысшие показатели степени деградации. Превышение этой концентрации приводит к снижению эффективности биodeградации из-за возможного перенаселения микроорганизмов и дефицита ресурсов.

Итого, на основании проведенного исследования можно сделать вывод о высокой эффективности биоремедиации с использованием препарата «Бакойл-KZ» в условиях нефтезагрязненных горных почв, при условии оптимальной дозировки, что не противоречит также [60, 61].

Исследование результатов посева семян кресс-салата в очищенной группе с использованием биопрепарата «Бакойл-KZ» через две недели показало следующие результаты:

Очистка почвы: Семена кресс-салата, посеянные в почву, очищенную препаратом «Бакойл-KZ» (2 г/кг), успешно проросли без проявления токсичности. В этой группе было отмечено, что биопрепарат эффективно разложил нефтепродукты (бензин и дизельное топливо), что способствовало созданию благоприятных условий для роста и развития растений.

Рост кресс-салата: Рост кресс-салата в группе, где почва была обработана препаратом «Бакойл-KZ», был заметно лучше по сравнению с контрольной группой, где почва оставалась загрязненной нефтепродуктами. Это указывает на положительное воздействие биоремедиации на почвенную среду и способность растений к нормальному развитию в очищенной почве.

Таким образом, результаты исследования подтверждают, что использование биопрепарата «Бакойл-KZ» способствует не только эффективной очистке почвы от нефтепродуктов, но и созданию условий для здорового роста растений, что является важным аспектом в экологическом и сельскохозяйственном контекстах.

Исследование эффективности биопрепарата «Бакойл-KZ» для очистки почв от бензина и дизельного топлива показало, что наиболее эффективная дозировка составляет 2 г/кг. В данном случае препарат продемонстрировал высокую способность к биоремедиации, обеспечивая прорастание почти всех семян без проявления токсичности. Это свидетельствует о полной очистке почвы от нефтепродуктов, что подтверждается результатами исследования (рисунок 3).

Как видно, использование «Бакойл-KZ» положительно влияет на всхожесть семян кресс-салата и количество проростков на загрязненной бензином почве. Наиболее эффективная дозировка составляет 2 г/кг, при которой достигаются максимальные показатели всхожести (100%) и количества проростков.

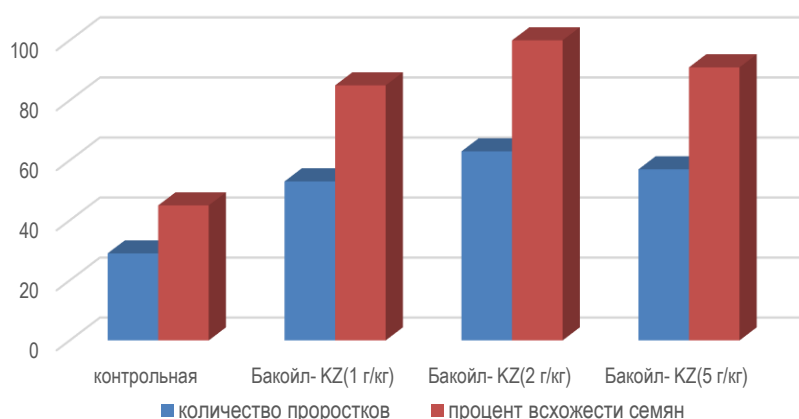


Рисунок 3. Результаты фитотеста с использованием кресс-салата на почве, загрязненной бензином

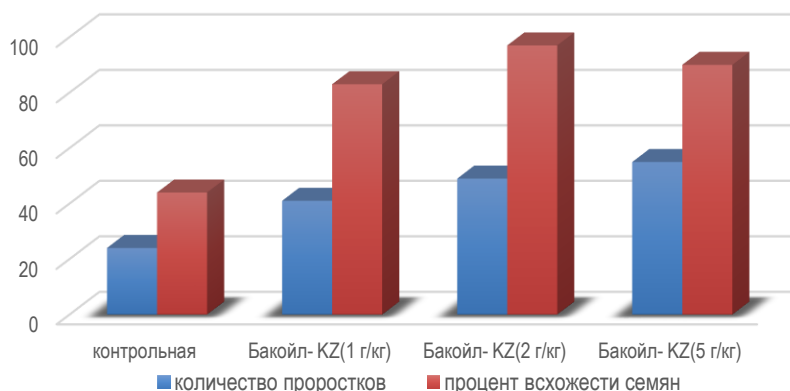


Рисунок 4. Результаты фитотеста с использованием кресс-салата на почве, загрязненной дизельным топливом

Увеличение дозировки до 5 г/кг незначительно снижает показатели, однако они остаются выше, чем в контрольной группе. Эти результаты подтверждают целесообразность применения «Бакойл-KZ» для биоремедиации нефтезагрязненных земель. Снижение эффективности было отмечено при использовании нижних доз (1 г/кг), где прорастание семян составило 84–82%, а также при чрезмерном количестве препарата (5 г/кг), где прорастание было выше, но не наблюдалось полной очистки почвы. Это указывает на важность оптимальной дозировки для достижения максимальной эффективности биоремедиации.

На рисунке 4 показаны результаты фитотеста с использованием кресс-салата на почве, загрязненной дизельным топливом.

Аналогичным образом микроорганизмы, содержащиеся в «Бакойл-KZ», разлагают углеводороды дизельного топлива до менее токсичных соединений, таких как углекислый газ и вода. Этот процесс биодegradации уменьшает токсичность почвы, что благоприятно влияет на прорастание семян и рост растений и не противоречит [62]. Результаты показывают, что оптимальная концентрация «Бакойл-KZ» составляет 2 г/кг, при которой достигаются максимальные показатели всхожести семян (97%) и значительное

количество проростков. При этой концентрации микроорганизмы наиболее эффективно разлагают углеводороды, улучшая условия для роста растений. Увеличение дозировки до 5 г/кг может приводить к перенаселению микроорганизмов, что вызывает конкуренцию за питательные вещества и кислород. Это может негативно сказаться на росте растений, несмотря на более высокое количество проростков [62, 63]. Использование «Бакойл-KZ» доказало свою эффективность в улучшении условий для роста растений на почве, загрязненной дизельным топливом. Наиболее эффективная дозировка составляет 2 г/кг, при которой достигаются лучшие показатели всхожести семян и количества проростков.

Таким образом, на основе проведенного исследования можно сделать вывод о высокой эффективности препарата «Бакойл-KZ» при концентрации 2 г/кг для биоремедиации почв, загрязненных бензином и дизельным топливом.

В целом механизм деградации нефтяных углеводородов подпадает под действие наиболее быстрой и полной деградации большинства органических загрязнителей. Опыты показывают, что биоремедиация является основным природным механизмом, который может очистить загрязнители нефтяных углево-

дорогов из окружающей среды. В этом процессе используются микроскопические организмы (в основном бактерии), живущие в почве, и «съедают» нефтяные углеводороды.

Этот результат биотестирования подтверждает высокую эффективность биоремедиации при использовании биопрепарата «Бакойл-KZ» в очистке загрязненных почв от продуктов нефтяных загрязнений, таких как бензин и дизельное топливо.

Результаты предыдущих исследований показывали эффективность биопрепарата, однако новое биотестирование в условиях нефтезагрязненных горных почв дополнительно укрепило эти выводы, продемонстрировав полное отсутствие токсичности для семян кресс-салата и успешное прорастание в очищенной почве. Это свидетельствует о способности «Бакойл-KZ» не только разлагать нефтепродукты, но и создавать благоприятные условия для роста и развития растений после очистки.

Таким образом, результаты данного исследования подчеркивают значимость биоремедиации в восстановлении загрязненных экосистем и подтверждают, что использование биопрепарата «Бакойл-KZ» является эффективным методом для устранения последствий нефтяных загрязнений в горных условиях.

В составе препарата «Бакойл-KZ» находятся следующие микроорганизмы: *Acinetobacter calcoaceticus* 2A, *Mixrobacterium lacticum* 41-3, *Arthrobacter terregens* и штаммы P1 и *Misgosossis roseus* 49.

Ниже нами рассмотрена эффективность каждого из микроорганизмов, входящих в состав препарата «Бакойл-KZ», при деструкции нефтепродуктов. Микроорганизм *Acinetobacter calcoaceticus* 2A широко известен своей способностью разлагать нефтепродукты, такие как бензин и дизельное топливо, благодаря его высокой активности гидролиза и окисления углеводородов. Изучение *Acinetobacter calcoaceticus* 2A и его способностей в области обработки ДНК выявляет несколько ключевых аспектов, которые могут быть релевантны для его потенциального применения в биоремедиации нефтепродуктов, таких как бензин и дизельное топливо. *Acinetobacter calcoaceticus* 2A проявляет строгую связь между конверсией двуничейной ДНК в одноничейную и её захватом, что является критическим для эффективности биоремедиации, так как этот механизм способствует активной адаптации к изменяющимся окружающим условиям. Анализируя ряд статей в исследуемой нами области [64–67] можно видеть разнообразие подходов к изучению *Acinetobacter calcoaceticus* и связанных с ним видов. Исследования охватывают молекулярную биологию, геномику, эпидемиологию и экологическую адаптацию, что подчеркивает важность этих бактерий как в клиническом, так и в экологическом контексте. *Acinetobacter calcoaceticus* обладает уникальными способностями к биоразложению различных органических загрязнителей, таких как фенол и его производные. Это делает его ценным микроорга-

низмом для биоремедиации, процесса очистки загрязненной среды с использованием живых организмов. Исследования показывают, что различные штаммы *Acinetobacter calcoaceticus* обладают уникальными генетическими особенностями, которые могут включать гены, связанные с обработкой углеводородов, что является ключевым фактором их эффективности в биоремедиации. Таким образом, *Acinetobacter calcoaceticus* 2A демонстрирует потенциал для использования в процессах биоремедиации углеводородных загрязнений, так как он обладает необходимыми генетическими и биохимическими свойствами для эффективного разложения бензина и дизельного топлива в окружающей среде. Исследования [68] показали, что микроорганизм *Mixrobacterium lacticum* 41-3 может эффективно использоваться для биоремедиации нефтяных загрязнений благодаря его способности к разложению углеводородов и адаптации к условиям загрязненных почв. Своей способностью к биоремедиации загрязненных почв, включая углеводороды, благодаря высокой активности гидролиза и метаболической пластичности известен и микроорганизм *Arthrobacter terregens*. Информация о конкретных штаммах P1 и *Misgosossis roseus* 49 ограничена, однако штаммы рода *Pseudomonas*, к которым, возможно, относятся эти микроорганизмы, известны своей способностью к биоремедиации различных углеводородов, включая бензин и дизельное топливо, через окисление их до более легко разлагаемых соединений [69]. В целом эти микроорганизмы эффективно взаимодействуют с нефтепродуктами в почве, ускоряя их деструкцию и улучшая состояние загрязненных территорий. Очистка нефтезагрязненных земель с помощью внесения микроорганизмов, известная как биоаугментация, действительно является доказанно целесообразным и эффективным методом. Микроорганизмы, которые могут разлагать углеводороды, внедряются в загрязненные участки, где они начинают процесс биодеградации, разрушая нефтепродукты до менее вредных веществ. Преимущества этих методов заключается в использовании природных микроорганизмов и минимизирует риски для окружающей среды по сравнению с химическими методами очистки. Биоаугментация может быть особенно эффективной в случаях, когда другие методы не дают результатов. В некоторых случаях биоаугментация может быть более экономически выгодной, чем физические или химические методы. Порой биоаугментация является единственно возможным вариантом, особенно в случаях с тяжелыми и длительными загрязнениями, где другие методы очистки не подходят из-за своей неэффективности или высокого риска для окружающей среды.

В таблице 4 показана эффективность микроорганизмов, входящих в состав препарата «Бакойл-KZ», при деструкции бензина и дизельного топлива в горных условиях.

ЭФФЕКТИВНОСТЬ БИОРЕМЕДИАЦИИ ПОЧВЫ, ЗАГРЯЗНЕННОЙ НЕФТЕПРОДУКТАМИ, В КОНТЕКСТЕ ЭКОЛОГИЧЕСКОГО ТУРИЗМА

Таблица 4. Эффективность микроорганизмов, входящих в состав препарата «Бакойл-KZ», при деградации бензина и дизельного топлива

№	Микроорганизм	Способность к деградации нефтепродуктов	Химические реакции	Особенности
1	<i>Acinetobacter calcoaceticus</i> 2A	Высокая способность к разложению бензина и дизельного топлива	$C_nH_{2n+2} + O_2 \rightarrow CO_2 + H_2O$ (окисление алканов)	Обладает высокой активностью гидролиза и окисления углеводородов; критическая связь между конверсией ДНК и её захватом
2	<i>Mixrobacterium lacticum</i> 41-3	Эффективное разложение углеводов	$C_7H_{16} + O_2 \rightarrow CO_2 + H_2O$ (окисление гептана)	Способность к адаптации к условиям загрязненных почв
3	<i>Arthrobacter terregens</i>	Высокая активность гидролиза и метаболической пластичности	$C_6H_5OH + O_2 \rightarrow CO_2 + H_2O$ (окисление фенола)	Известен способностью к биоремедиации загрязненных почв, включая углеводороды
4	<i>Pseudomonas</i> spp. (штаммы P1 и <i>Misgosossis roseus</i> 49)	Эффективное разложение бензина и дизельного топлива	$C_8H_{18} + O_2 \rightarrow CO_2 + H_2O$ (окисление октана)	Окисление углеводородов до более легко разлагаемых соединений

Таким образом исследования показали, что все микроорганизмы, входящие в состав препарата «Бакойл-KZ», демонстрируют высокую эффективность в деградации нефтепродуктов, и делают данный препарат перспективным для использования в процессах биоремедиации загрязненных почв, включая территории, подверженные воздействию транспортного туризма. В частности, касательно микроорганизмов следует отметить:

1) *Acinetobacter calcoaceticus* 2A: Изучение способностей этого микроорганизма выявило его уникальные генетические особенности, связанные с обработкой углеводов, что делает его эффективным в биоремедиации.

2) *Mixrobacterium lacticum* 41-3: Исследования показали, что этот микроорганизм эффективно разлагает нефтяные загрязнения и адаптируется к условиям загрязненной среды.

3) *Arthrobacter terregens*: Высокая активность гидролиза и способность к метаболической пластичности позволяют этому микроорганизму эффективно разлагать углеводороды в загрязненной почве.

4) *Pseudomonas* spp. (штаммы P1 и *Misgosossis roseus* 49): Эти штаммы известны своей способностью окислять углеводороды, включая бензин и дизельное топливо, до более легко разлагаемых соединений, что способствует эффективной биоремедиации.

Далее нами предлагается методика применения препарата «Бакойл-KZ» для биоремедиации загрязненных почв, в контексте экологического туризма

Лабораторные исследования показали, что для эффективной биоремедиации загрязнённых углеводородами почв оптимальная дозировка препарата «Бакойл-KZ» составляет 2 г/кг почвы. Для переноса этой методики в реальные условия необходимо учитывать плотность почвы и способы внесения препарата, обеспечивающие его равномерное распределение. Средняя плотность почвы на исследуемом участке определяется методом взвешивания и объёмно-го измерения. Учитывая, что для большинства сельскохозяйственных и лесных почв плотность составляет около 1,3–1,5 т/м³, рассчитаем массу почвы на 1 гектар.

Масса почвы на глубину 10 см (0,1 м) на площади 1 м² определяется по формуле:

$$m = \text{плотность почвы} \cdot \text{объём почвы}.$$

При плотности почвы 1,5 т/м³ масса почвы на 1 м² на глубину 10 см составит: $m = 1,5 \text{ т/м}^3 \cdot 0,1 \text{ м} = 150 \text{ кг/м}^2$.

Для площади 1 гектар (10 000 м²) масса почвы на глубину 10 см составляет:

$$m_{\text{гектар}} = 150 \text{ кг/м}^2 \cdot 10\,000 \text{ м}^2 = 1\,500\,000 \text{ кг} = 1\,500 \text{ т}.$$

Определение необходимого количества препарата

Лабораторная дозировка 2 г/кг почвы преобразуется в дозировку на гектар: $m_{\text{препарата}} = 2 \text{ г/кг} \cdot 1\,500\,000 \text{ кг} = 3\,000\,000 \text{ г} = 3\,000 \text{ кг}$.

Таким образом, для обработки 1 гектара почвы на глубину 10 см требуется 3 000 кг препарата «Бакойл-KZ».

Методы внесения препарата

1. Растворение препарата в воде

Препарат растворяется в воде до получения рабочей концентрации. Полученный раствор равномерно распределяется по поверхности почвы с помощью системы опрыскивания, обеспечивающей точный контроль дозировки.

Рассчитанное количество препарата (3 000 кг) растворяется в объёме воды, обеспечивающем равномерное покрытие всей площади (1 гектар).

2. Прямое внесение порошка

Препарат может вноситься в сухом виде с использованием специализированного оборудования, способного равномерно распределить препарат по поверхности почвы.

3. Периодическое внесение

Для больших площадей возможно многократное внесение препарата с использованием техники, обеспечивающей равномерное распределение препарата по почве.

Дополнительные рекомендации

Для обеспечения точного распределения препарата рекомендуется использовать GPS-системы и соответствующую технику (например, тракторы с распределительными установками).

Важно учитывать влажность почвы: при её недостатке необходимо провести дополнительное увлаж-

ЭФФЕКТИВНОСТЬ БИОРЕМЕДИАЦИИ ПОЧВЫ, ЗАГРЯЗНЕННОЙ НЕФТЕПРОДУКТАМИ, В КОНТЕКСТЕ ЭКОЛОГИЧЕСКОГО ТУРИЗМА

нение перед внесением препарата для улучшения проникновения активных веществ.

Таблица 5 Расчёт количества применяемого препарата «Бакойл-KZ» для обработки 1 га загрязнённой площади в условиях экологического туризма

Параметр	Значение
Плотность почвы, т/м ³	1,5
Глубина обработки, см	10
Площадь обработки, га	1
Масса 1 м ² почвы на глубину 10 см, кг	150
Масса 1 га почвы на глубину 10 см, кг	1 500 000
Дозировка препарата «Бакойл-KZ», т/кг	2
Общее количество препарата, кг	3 000
Стоимость препарата «Бакойл-KZ», тг/кг	3 000
Общие затраты на препарат, тг	9 000 000
Дополнительные затраты на внесение, тг	600 000
Общие затраты на обработку 1 га, тг	96 00 000
Потенциальный доход от экотуризма, тг/год	30 000 000
Прирост дохода за счёт улучшения экологии, %	15
Прирост дохода в результате обработки, тг/год	4 500 000

Таблица 6. Эколого-экономическая эффективность экотуризма

Параметр	Значение
Экологические показатели	
Улучшение качества почвы после обработки, %	30
Увеличение биоразнообразия, %	20
Снижение уровня загрязнённости углеводородами, %	90
Повышение привлекательности территории	высокое
Уровень восстановления экосистемы	значительный
Экономические показатели	
Площадь обработки, га	1
Плотность почвы, т/м ²	1,5
Масса почвы на глубину 10 см, т	1 500
Необходимое количество препарата «Бакойл-KZ», кг	3 000
Стоимость препарата «Бакойл-KZ», тг/кг	3 000
Общие затраты на препарат, тг	9 000 000
Дополнительные затраты на внесение, тг	600 000
Общие затраты на обработку, тг	9 600 000
Потенциальный доход от экотуризма, тг/год	3 000 000
Прирост дохода за счёт улучшения экологии, %	15
Прирост дохода в результате обработки, тг/год	4 500 000
Окупаемость инвестиций, год	2,13
Социальные показатели	
Создание новых рабочих мест	10
Обучение и повышение квалификации, чел.	20
Улучшение условий проживания	значительное
Повышение уровня экологической осведомлённости	высокое

Применение данной методики позволит обеспечить равномерное распределение препарата «Бакойл-KZ» по поверхности почвы и точное дозирование, что способствует эффективной биоремедиации за-

грязнённых углеводородами почв на территории площадью 1 гектар.

В таблице 5 приведены расчёты количества применяемого препарата «Бакойл-KZ» для обработки 1 га загрязнённой площади в условиях экологического туризма.

Внедрение препарата «Бакойл-KZ» для биоремедиации может оказаться эффективным при комплексном подходе, включающем дополнительные меры по привлечению туристов и оптимизации затрат. Применение препарата «Бакойл-KZ» на территории площадью 1 гектар демонстрирует высокую эколого-экономическую эффективность. Улучшение экологического состояния почвы, увеличение биоразнообразия и снижение уровня загрязнённости способствует привлекательности территории для экотуризма, что в свою очередь приводит к значительному приросту доходов и социальным улучшениям. В таблице 6 приведена эколого-экономическая эффективность экотуризма.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение биопрепарата «Бакойл-KZ» для очистки почвы, загрязнённой нефтепродуктами, не только эффективно решает проблему загрязнения, но и имеет значительные преимущества в контексте экологического туризма. Биоремедиация с использованием «Бакойл-KZ» может обеспечить значительное улучшение экологического состояния почвы. Так на примере опытов за 30 дней разложения углеводородов интенсивность их деструкции составила от 67,8% до 97,2%, что значительно превышает результаты традиционных методов очистки (которые в контроле составили только 30,6%), что демонстрирует высокую эффективность биопрепарата в восстановлении загрязнённых экосистем.

Как видно, очистка почвы с использованием «Бакойл-KZ» способствует улучшению её качества, восстановлению биоразнообразия и снижению уровня токсичности, что играет ключевую роль в создании устойчивых экосистем. Например, восстановление экосистемы позволяет растениям, без проблем прорасти на очищенной почве, что подтверждает её безопасность для роста и развития флоры. Это также снижает угрозу для фауны и местных экосистем, создавая благоприятные условия для их возрождения.

Данные экологические улучшения прямо способствуют повышению привлекательности территории для экотуризма. Экологически чистые и восстановленные территории становятся привлекательными для туристов, ориентирующихся на отдых в природных и экологически безопасных условиях. С ростом интереса к экотуризму возрастает потребность в таких зонах, что приводит к увеличению потока туристов. Например, восстановленные территории могут стать частью экологических маршрутов, где туристы могут изучать процесс восстановления природы и участвовать в экологически ориентированных активностях.

Кроме того, развитие экотуризма в восстановленных зонах имеет экономические преимущества. Обработанный 1 гектар почвы требует 3 000 кг препарата, что обойдётся в 9,6 млн тенге. Однако при успешном восстановлении экосистемы и повышении привлекательности территории для экотуристов, прирост дохода от экотуризма может составить до 4,5 млн тенге в год. Это подтверждает высокую экономическую эффективность биоремедиации с использованием «Бакойл-KZ», где инвестиции в экологическую реабилитацию обеспечивают быстрый возврат и создание новых источников дохода.

Социальные выгоды также неоспоримы. Восстановление загрязнённых территорий с помощью биопрепарата создаёт новые рабочие места, связанные с обслуживанием экотуризма, образовательными программами и экологическими проектами. Местные жители получают возможность участвовать в программах по восстановлению экосистем, повышая свою квалификацию и создавая условия для улучшения качества жизни.

Таким образом, биоремедиация почвы с использованием «Бакойл-KZ» не только эффективно решает проблему загрязнения, но и способствует развитию экотуризма, что в свою очередь приносит значительные экономические и социальные выгоды для региона. Улучшение экологического состояния, восстановление биоразнообразия и повышение привлекательности территории для туристов делают этот метод не только экологически устойчивым, но и выгодным с экономической точки зрения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Smith, J., Brown, R., & Green, D. Environmental impacts of tourism on soil pollution: A case study of automotive emissions in tourist regions // *Environmental Science and Pollution Research*. – 2017. – Vol. 24(18). – P. 15502–15515.
2. UNEP (2020). *Tourism and Environment: Annual Report*. United Nations Environment Programme.
3. Михайлов, А. И., Петров, В. С., & Иванова, Е. В. Влияние автомобильного транспорта на загрязнение почвы в горной местности (на примере региона горы Белухи) // *Экология и природопользование*. – 2019. – № 6. – С. 42–54. [Mikhaylov, A. I., Petrov, V. S., & Ivanova, E. V. Vliyaniye avtomobil'nogo transporta na zagryazneniye pochvy v gornoy mestnosti (na primere regiona gory Belukhi) // *Ekologiya i prirodopol'zovanie*. – 2019. – Vol. 6. – P. 42–54. (In Russ.)]
4. UNEP (2020). *Environmental Impact of Transport on Soil Pollution in Unique Natural Areas*. United Nations Environment Programme.
5. Brown, J. & Smith, R. Soil Pollution from Transport Accidents // *Journal of Environmental Protection*. – 2015. – Vol. 10(5). – P. 200–210.
6. Zhanar Kassenova, Yeldos Isakov, Bolat Yermagambet, Bauyrzhan Kapsalyamov, Mezgil Saulebekova, Dina Imbayeva, Maira Kazankapova and Dariga Nasyrova. Effectiveness of Oil-Contaminated Soil Reclamation with Humic Preparations // *International Journal of Agriculture and Biosciences*. – 2024. – Vol. 13(3). – P. 474–487. <https://doi.org/10.47278/journal.ijab/2024.154>.
7. Касенова Ж. М., Ермагамбет Б. Т., Капсаламов Б. А., Туяк С. Н., Саулебекова М. Е., Имбаева Д. С., Казанкапова М. К., Исаков Е. С. Экологическая оценка эффективности методов обработки почвы гуминовыми веществами для снижения загрязнения металлами // *Вестник науки Казахского агротехнического исследовательского университета имени С.Сейфуллина*. – 2024. – № 2 (121). – С. 82–96. ISSN 2710-3757, ISSN 2079-939X. *Сельскохозяйственные науки*. [Kasenova Zh. M., Ermagambet B. T., Kapsalyamov B. A., Tuyak S. N., Saulebekova M. E., Imbaeva D. S., Kazankapova M. K., Isakov E. S. Ekologicheskaya otsenka effektivnosti metodov obrabotki pochvy guminovymi veshchestvami dlya snizheniya zagryazneniya metalami // *Vestnik nauki Kazakhskogo agrotekhnicheskogo issledovatel'skogo universiteta imeni S.Seyfullina*. – 2024. – No. 2 (121). – P. 82–96. ISSN 2710-3757, ISSN 2079-939X. *Sel'skokhozyaystven'nye nauki*. (In Russ.)] [https://doi.org/10.51452/kazatu.2024.2\(121\).1658](https://doi.org/10.51452/kazatu.2024.2(121).1658)
8. Kapsalyamov B., Tuyak S., Kassenova Zh., Yermagambet B., Kazankapova M. Innovative ways to clean oil-contaminated soil. XIII international scientific conference. Tallinn. Estonia. 23-24.05.2024. – P 85-92.
9. UNEP (2014). *Transport and Soil Pollution: Addressing the Challenge*. United Nations Environment Programme.
10. Бакирова К. III., Курманбаев А. А., Амирасева Л. К. Оценка нефтеокисляющей активности биопрепаратов серии «Бакойл-KZ» [Bakirova K. Sh., Kurmanbaev A. A., Amirasheva L. K. Otsenka nefteokislyayushchey aktivnosti biopreparatov serii «Bakoyl-KZ» (In Russ.)] // *Bulletin d'Eurotalent-FIDJIP*. – 2013. – No. 1. – P. 24–26.
11. Казиева А. А., Мелякина Э. И. Сравнительная оценка различных доз биопрепарата для очистки нефтезагрязнённых почв // *Нефтегазовые технологии и экологическая безопасность*. – 2014, № 2 (58). – С. 54–58. [Kazieva A. A., Melyakina E. I. Sravnitel'naya otsenka razlichnykh doz biopreparata dlya ochistki neftezagryaznennykh pochv // *Neftegazovye tekhnologii i ekologicheskaya bezopasnost'*. – 2014, No. 2 (58). – P. 54–58. (In Russ.)]
12. Есенманова М. С. и др. Обезвреживание нефтезагрязнённых почв биопрепаратами // *Современные проблемы науки и образования*. – 2016. № 6. – С. 511–511. [Esenamanova M. S. i dr. Obezvrezhivaniye neftezagryaznennykh pochv biopreparatami // *Sovremennye problemy nauki i obrazovaniya*. – 2016. No. 6. – P. 511–511.]
13. Г.Өнерхан, Л.Скипин, Е.Баделгазы, Е.Жумай, Е.Сыздыков. Мұнай өнімдерімен ластанған топырақты биоремедиациялау // *КазУТБ*. – 2023. – Т. 4. – №. 21. [G.Önerkhan, L.Skipin, E.Badelgazhy, E.Zhumay, E.Syzdykov. Mұnay өнімдерімен lastanған toпырақты bioremediatsiyalaу // *KazUTB*. – 2023. – Vol. 4. – No. 21. (In Kaz.)]
14. Каренов Р. С., Бекишев К. Б. Биотехнология: её роль и место в научно-техническом прогрессе [Karenov R. S., Bekishev K. B. Biotekhnologiya: ee rol' i mesto v nauchno-tekhnicheskom progresse (In Russ.)] // *Bulletin of the Karaganda university Biology. Medicine. Geography series*. – 2018. – Vol. 91. – No. 3. P. 53–57.
15. Патент KZ (13) В (11) 32292, МПК: C12N 1/20, B09C 1/10. Способ биоремедиации нефтезагрязнённых почв. / Саданов А.К., Гаврилова Н.Н., Ратникова И.А.,

- Айткельдиева С.А. - 9 с.: ил. Опубликовано 15.07.2014. Бюл. № 15. [Patent KZ (13) B (11) 32292, МРК: C12N 1/20, B09C 1/10. Sposob bioremediatsii neftezagryaznennykh pochv. / Sadanov A.K., Gavrilova N.N., Ratnikova I.A., Aytkel'dieva S.A. - 9 p.: il. Opublikovano 15.07.2014. Byul. No. 15. (In Russ.)]
16. Onerkhan G., Durmekbaeva Sh., Akhmetova N. Bioindication of water quality of Lake Zeran using micro seaweed // *Polish journal of science*. – 2019. – № 19, Vol.1. – P. 7–11.
17. Карасева, Э.В. Биоремедиация черноземной почвы, загрязненной нефтью. Э.В. Карасева, И.Е. Гирич, 2020. [Karaseva, E.V. Bioremediatsiya chernozemnoy pochvy, zagryaznennoy neft'yu. E.V. Karaseva, I.E. Girich, 2020. (In Russ.)]
18. Худокормов, А.А., Алешина, Н.Ю., Карасев, С.Г. // *Биотехнология*. – 2005. – № 2. – С. 67–72. [Khudokormov, A.A., Aleshina, N.Yu., Karasev, S.G. // *Biotechnologiya*. – 2005. – No. 2. – P. 67–72.]
19. Киреева, Н.А. Микробиологические процессы в нефтезагрязненных почвах. – Уфа: БашГУ, 1994. – 172 с. [Kireeva, N.A. Mikrobiologicheskie protsessy v neftezagryaznennykh pochvakh. – Ufa: BashGU, 1994. – 172 p.]
20. Myers, R. Gravimetric analysis: A comprehensive guide // *Journal of Analytical Chemistry*. – 2002. – Vol. 74(2). – P. 115–123.
21. Smith, K., & Abbott, W. Gas chromatography in environmental analysis // *Environmental Science & Technology*. – 2005. – Vol. 39(12). – P. 450–456.
22. Jones, B. Soil spectrophotometry: Theory and application // *Soil Science Society of America Journal*. – 1998. – Vol. 62(3). – P. 670–678.
23. Wang, X. Bioassays for assessing phytotoxicity in contaminated soils // *Environmental Pollution*. – 2014. – Vol. 189. – P. 208–214.
24. Brady, N. C., & Weil, R. R. (2010). *The Nature and Properties of Soils*, 14th Edition. Prentice Hall.
25. Иванов, А. В., Петров, Б. Г. Эффективность биопрепаратов при очистке загрязненных нефтепродуктами почв // *Журнал экологических исследований*. – 2020. [Ivanov, A. V., Petrov, B. G. Effektivnost' biopreparatov pri oчитke zagryaznennykh nefteproduktami pochv // *Zhurnal ekologicheskikh issledovaniy*. – 2020. (In Russ.)]
26. Сидоров, В. Н., Сидорова, Л. В. Применение микробиологических методов для очистки почв // *Экология и безопасность*. – 2019. [Sidorov, V. N., Sidorova, L. V. Primenenie mikro-biologicheskikh metodov dlya oчитki pochv // *Ekologiya i bezopasnost'*. – 2019. (In Russ.)]
27. Козлов, Е. А. Биоремедиация загрязненных почв: теория и практика // *Биотехнологии и экология*. – 2018. [Kozlov, E. A. Bioremediatsiya zagryaznennykh pochv: teoriya i praktika // *Biotechnologii i ekologiya*. – 2018. (In Russ.)]
28. Смирнова, Н. В., и др. Оптимизация условий биоремедиации почв // *Вестник аграрной науки*. – 2017. [Smirnova, N. V., i dr. Optimizatsiya usloviy bioremediatsii pochv // *Vestnik agrarnoy nauki*. – 2017. (In Russ.)]
29. Петров, А. И., Иванова, Т. В. Методы и подходы к биоремедиации нефтезагрязненных почв // *Журнал биологических исследований*. – 2016. [Petrov, A. I., Ivanova, T. V. Metody i podkhody k bioremediatsii neftezagryaznennykh pochv // *Zhurnal biologicheskikh issledovaniy*. – 2016. (In Russ.)]
30. Заболотских В.В., Васильев А.В., Танких С.Н. Экспресс-диагностика токсичности почв, загрязненных нефтепродуктами // *Известия Самарского научного центра РАН*. – 2012. – Т.14, № 1(3). – С. 734–738. [Zabolotskikh V.V., Vasil'ev A.V., Tankikh S.N. Ekspress-diagnostika toksichnosti pochv, zagryaznen-nykh nefteproduktami // *Izvestiya Samarskogo nauchnogo tsentra RAN*. – 2012. – Vol.14, No. 1(3). – P. 734–738. (In Russ)]
31. Smith D. R. et al. General chemistry of metals, sampling, analytical methods, and speciation. Handbook on the Toxicology of Metals. – Academic Press. – 2022. – P. 15–54.
32. WHO.. Fluoride in Drinking Water. World Health Organization. – 2002.
33. Alloway B. J. Sources of heavy metals and metalloids in soils. Heavy metals in soils: trace metals and metalloids in soils and their bioavailability. – 2013. – P. 11-50.
34. Guertin J. Toxicity and bioavailability of petroleum hydrocarbons in soil // *Journal of Environmental Management*. – 2008. – Vol. 88(3). – P. 625–634.
35. UNEP (2017). World Tourism Organization's Report on Tourism and Sustainability. United Nations Environment Programme.
36. Cummings, C., & Lee, H. Impact of tourism on soil degradation // *Journal of Environmental Science*. – 2021. – Vol. 59(4). – P. 351–358.
37. Zhang, X., & Lin, Z. Evaluation of tourist-induced soil pollution in coastal zones // *Marine Pollution Bulletin*. – 2016. – Vol. 113(1–2). – P. 356–362.
38. Liang, H., & Wang, Y. Climate change and tourism: Addressing the environmental costs of tourism activities // *Tourism Management Perspectives*. – 2020. – Vol. 34. – P. 100668.
39. Nelson, A. E., & Brooks, T. Tourism impacts on soil health in high-altitude regions // *Environmental Monitoring and Assessment*. – 2019. – Vol. 191(7). – P. 434.
40. Bao, Q., & Yang, L. Environmental management of tourism in the context of climate change // *Environmental Research Letters*. – 2023. – Vol. 18(8). – P. 083001.
41. Cheng, F., & Liu, J. Soil pollution in ecologically sensitive regions: The role of tourism in soil contamination // *Environmental Geochemistry and Health*. – 2022. – Vol. 44(2). – P. 617–624.
42. Yu, X., & Zhang, L. Sustainable tourism and soil pollution: A case study in China's coastal tourist cities // *Environmental Science and Pollution Research*. – 2018. – Vol. 25(4). – P. 1089–1096.
43. Thompson, L. P., & Perry, A. (2020). Measuring the impacts of tourism on urban soils // *Urban Forestry & Urban Greening*. – 2020. – Vol. 47. – P. 126502.
44. Zhang, S., & Wang, Z. Bioaccumulation of pollutants in soil: The effects of tourism on soil health // *Soil Science and Plant Nutrition*. – 2021. – Vol. 67(4). – P. 253–262.
45. IAEA. Radioactivity and environmental protection // *International Atomic Energy Agency Report*. – 2009. – Vol. 109. – P. 23–30.
46. Lee, W., & Kim, J. A study of soil pollution from touristic transportation // *Science of the Total Environment*. – 2017. – Vol. 601–602. – P. 1736–1744.
47. WHO. Guidelines for Drinking-Water Quality. World Health Organization. – 2004.
48. Li, M., & Song, X. Influence of tourism on environmental pollution in urban regions // *Environmental Pollution*. – 2029. – Vol. 258, – P. 113596.

49. Xie, S., & Zhu, L. Sustainable tourism practices and soil conservation // *Environmental Management*. – 2016. – Vol. 58(5). – P. 898–907.
50. Dong, X., & Xu, Y. Effects of human activities on soil health in tourism hotspots // *Soil and Sediment Contamination*. – 2018. – Vol. 27(5). – P. 452–463.
51. Kassem, Z., & Wang, P. Assessing environmental impacts of tourism on soil properties // *Tourism and Environment*. – 2021. – Vol. 18(2). – P. 213–222.
52. Diedrich, A., & Lee, J. Eco-tourism and its contribution to soil conservation in developing regions // *Environmental Science & Policy*. – 2020. – Vol. 113. – P. 107–114.
53. Huang, Y., & Li, S. Agricultural land degradation caused by tourism-related activities // *Soil Science Society of America Journal*. – 2020. – Vol. 84(3). – P. 799–809.
54. Gonzalez, R., & Jimenez, J. Long-term environmental impacts of tourism on soil and water quality // *Journal of Environmental Quality*. – 2019. – Vol. 48(4). – P. 1171–1180.
55. Zhang, W., & Li, C. Impact of tourism on soil erosion in fragile ecosystems // *Land Degradation & Development*. – 2017. – Vol. 28(6). – P. 1882–1890.
56. Luedeling, E., & Liu, D. Tourism and land degradation: A global perspective // *Global Environmental Change*. – 2020. – Vol. 61. – P. 102036.
57. Cardenas, M., & Fox, J. Soil erosion in tourist regions: Global trends and mitigation strategies // *Land Use Policy*. – 2021. – Vol. 106. – P. 104469.
58. Zhou, J., & Wu, F. Assessment of soil pollution in tourist destinations using the index of geoaccumulation // *Science of the Total Environment*. – 2022. – Vol. 821. – P. 153410.
59. Wang, S., & Zhang, H. Pollution control in tourism regions: A sustainable soil management approach // *Sustainable Development*. – 2021. – Vol. 29(1). – P. 98–108.
60. Diaz, H., & Yang, P. Tourism's role in soil preservation and protection in ecologically sensitive areas // *Ecological Applications*. – 2019. – Vol. 29(2). – P. e02022.
61. Lin, X., & Zhang, Y. Sustainable practices in tourism for soil and water conservation // *Environmental Sustainability*. – 2021. – Vol. 9(4). – P. 539–547.
62. G. Chen, L. Zhang. Quantifying the Environmental Impact of Tourism on Soil Health in Developing Regions // *Geosciences*. – 2020. – Vol. 10(5). – P. 169.
63. Sandoval, S., & Torres, A. Tourism and environmental sustainability: The case of tourism on urban soils // *Ecological Indicators*. – 2020. – Vol. 112. – P. 106075.
64. Arora, D., & Sharma, S. The impact of tourism activities on soil properties: A field study // *International Journal of Environmental Science and Technology*. – 2019. – Vol. 16(3). – P. 1217–1225.
65. Zhao, M., & Xu, L. Soil pollution caused by tourism activities in the Chinese Alps // *Tourism Geographies*. – 2017. – Vol. 19(4). – P. 590–604.
66. Cooper, R., & Burke, M. Anthropogenic factors and soil degradation in tourism regions // *Environmental Reviews*. – 2019. – Vol. 27(2). – P. 265–276.
67. R. Smith, W. Johnson, L. Chen. Tourism-induced soil degradation in rural areas // *Environmental Research Letters*. – 2022. – Vol. 17(3). – P. 084002.
68. Xu, X., & Zhou, Z. The impacts of tourism on soil properties and the environment in Mediterranean areas // *Geosciences*. – 2020. – Vol. 10(6). – P. 221.
69. E. Leung, A. Yang. Sustainability in tourism practices and its impact on soil conservation // *International Journal of Tourism Research*. – 2021. – Vol. 23(4). – P. 845–859.

ЭКОЛОГИЯЛЫҚ ТУРИЗМ КОНТЕКСТІНДЕ МҰНАЙ ӨНІМДЕРІМЕН ЛАСТАНҒАН ТОПЫРАҚТЫ БИОРЕМЕДИАЦИЯЛАУДЫҢ ТИІМДІЛІГІ

Г. Ө. Өнерхан^{1*}, Е. Б. Баделгажы², Б. А. Капсаямов², З. Х. Қыстаубаева³, Е. Т. Сыздықов⁴

¹⁾ *Қазақ технология және бизнес университеті, Астана, Қазақстан*

²⁾ *Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан*

³⁾ *Астана медициналық университеті, Астана, Қазақстан*

⁴⁾ *Ш.Уәлиханов атындағы Көкшетау университеті, Көкшетау, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: guline@mail.ru

Мақала табиғи ортаны сақтау мақсатында экологиялық туризм процесінде мұнай өнімдерімен ластанған топырақты тазарту әдістерін зерттеуге арналған. Топырақты тазарту үшін гидрокарбон қышқылдандыратын микроорганизмдер негізінде жасалған bakoil-KZ биологиялық өнімі пайдаланылды. Бұл препаратты қолдану мұнай өнімдерінен топырақты тазарту дәрежесін 67.8% - дан 97.2% - ға дейін арттырды, ал ең тиімді дозасы 2 г/кг болды. су кресі өскіндерін қолдана отырып морфологиялық талдау және биотестеу тазартылған топырақта улы қасиеттердің жоқтығын көрсетті. Bakoil-kz (1 г/кг және 5 г/кг) қосылған эксперименттерде тұқымдардың сәйкесінше 84–82% және 88–90% өніп шықты, бұл топырақты тазартуды көрсетеді. Ластанған топырақта биоөнімдерді қоспай, тек 19–23 тұқым үлгісі (38–46%) өніп шықты, бұл өзін-өзі тазарту процесінің баяулауын көрсетеді. Bakoil-KZ пайдалану экологиялық қауіпсіз, экологиялық апаттардың алдын алады, аз ресурстарды қажет етеді және экожүйеге зиян келтірместен әртүрлі көлемдегі жер учаскелерін тазартуға мүмкіндік береді. Бұл препаратты туристік белсенді аймақтардағы топырақты қалпына келтірудің тиімді құралына айналдырады. Топырақтың ластануын болдырмауды тиімді басқару және bakoil-KZ биологиялық өнімі сияқты заманауи тазарту әдістерін қолдану бірегей табиғи аймақтардың таза табиғатын сақтауда шешуші рөл атқарады. Тұрақты туристік тәжірибелер мен технологияларды енгізу қоршаған ортаға жағымсыз әсерлерді азайтуға және биоәртүрлілік пен экожүйелерді сақтауға көмектеседі.

Түйін сөздер: мұнай өнімдері, бензин, дизель отыны, биоремедиация, био-тестілеу, «Бакойл-KZ», топырақ, ластану.

THE EFFECTIVENESS OF BIOREMEDIATION OF SOIL CONTAMINATED
WITH PETROLEUM PRODUCTS IN THE CONTEXT OF ECO-TOURISM

G. A. Onerkhan^{1*}, Ye. B. Badyelgajy², B. A. Kapsalyamov², Z. H. Kystaubayeva³, Ye. T. Syzdykov⁴

¹⁾ *Kazakh University of Technology and Business, Astana, Kazakhstan*

²⁾ *L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan*

³⁾ *Astana medical University, Astana, Kazakhstan*

⁴⁾ *Kokshetau University named after Sh. Ualikhanov, Kokshetau, Kazakhstan*

* E-mail for contacts: guline@mail.ru

The article is devoted to the study of methods for cleaning soils contaminated with petroleum products in the process of eco-tourism in order to preserve the natural environment. Bakoil-KZ biological product, created on the basis of hydrocarbon-oxidizing microorganisms, was used for soil purification. The use of this drug increased the degree of soil purification from petroleum products from 67.8% to 97.2%, with the most effective dosage being 2 g/kg. Morphological analysis and biotesting using watercress sprouts showed the absence of toxic properties in the purified soil. In experiments with the addition of Bakoil-KZ (1 g/kg and 5 g/kg), 84–82% and 88–90% of seeds germinated, respectively, which indicates soil purification. In polluted soil, only 19–23 seed specimens (38–46%) germinated without the addition of biological products, which indicates a slow self-purification process. The use of Bakoil-KZ is environmentally safe, prevents environmental disasters, requires fewer resources and allows land plots of various scales to be cleaned without damage to the ecosystem. This makes the drug an effective tool for soil restoration in touristically active areas. Effective management of soil pollution elimination and the use of modern cleaning methods, such as Bakoil-KZ biologics, play a key role in preserving the pristine nature of unique natural areas. The introduction of sustainable tourism practices and technologies will help minimize the negative impact on the environment and contribute to the conservation of biodiversity and ecosystems.

Keywords: petroleum products, gasoline, diesel fuel, bioremediation, biotesting, «Бакойл-KZ», soil, pollution.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-36-42>

УДК 504.054

ОЦЕНКА ЗАГРЯЗНЕНИЯ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫМИ МЕТАЛЛАМИ В СИСТЕМЕ «СНЕГОВОЙ ПОКРОВ – ПОЧВЕННЫЙ ПОКРОВ – РАСТИТЕЛЬНОСТЬ» НА ТЕРРИТОРИИ Г. ПАВЛОДАР И ПРИГОРОДА

А. А. Фаурат*, Г. С. Ажаев

Торайгыров университет, Павлодар, Казахстан

** E-mail для контактов: Alina03.09@mail.ru*

В статье представлены результаты исследования уровня загрязнения редкоземельными металлами на городских и пригородных садово-огородных участках города Павлодар. Павлодар, как индустриально развитый город, подвергается воздействию выбросов промышленных предприятий, транспорта и печного отопления, что делает его уязвимым к загрязнению редкоземельными металлами. Основное внимание уделено загрязнению лантаноидами в системе «осадки (снег) – почва – овощи»: накопление металлов в снегу, их миграция в почву и аккумуляция в растениях. Результаты показывают, что концентрации исследуемых элементов в твердой фазе снега убывают в следующем порядке (мг/кг): Ce (54,1) > La (27,9) > Nd (26,9) > Gd (5,8) > Dy (5) > Eu (1,4) > Ho (0,8) > Lu (0,3). В почвах концентрации металлов убывают в порядке (мг/кг): Ce (33,28) > La (15,41) > Nd (14,72) > Gd (3,74) > Lu (1,3) > Ho (1,01) > Eu (0,82) > Dy (0,39). Выявлено, что содержание металлов в снегу значительно превышает их концентрации в почвах, за исключением гольмия и лютеция, чьи концентрации выше в почве. Фоновые концентрации в снеговом покрове в среднем на 1,3 раза ниже городских. Металлы La и Ce имеют очень низкие значения накопления как для картофеля, так и для томата, хотя наблюдается незначительное превышение коэффициента бионакопления для картофеля. Эти данные важны для разработки мер по снижению загрязнения и охране здоровья населения.

Ключевые слова: редкоземельные металлы, снеговой покров, загрязнение почвы, биоаккумуляция, садово-дачные участки.

ВВЕДЕНИЕ

Группа редкоземельных металлов (РЗМ) включает 15 лантаноидов, которые представляют собой элементы с атомными номерами от 57 (лантан) до 71 (лютеций), а также скандий (Sc) и иттрий (Y). Лантаноиды включают церий (Ce), празеодим (Pr), неодим (Nd), прометий (Pm), самарий (Sm), европий (Eu), гадолиний (Gd), тербий (Tb), диспрозий (Dy), гольмий (Ho), эрбий (Er), тулий (Tm), иттербий (Yb) и лютеций (Lu) [1]. Редкоземельные металлы характеризуются уникальными геохимическими свойствами, которые позволяют им образовывать различные соединения и сплавы. Они известны своей высокой термической стабильностью и устойчивостью к окислению, что делает их ценными в высокопроизводительном использовании, таком как электроника, магниты и катализаторы [2].

За последнее десятилетие мировой спрос на редкоземельные элементы (РЗЭ) значительно возрос, что привело к увеличению их выбросов в окружающую среду [3]. Это вызвало беспокойство по поводу воздействия РЗЭ на окружающую среду и здоровье человека [4]. Основные источники выбросов редкоземельных элементов в воду и воздух – это процессы добычи и переработки полезных ископаемых, электростанции на мазуте и транспортные средства [5]. Редкоземельные металлы также накапливаются в сельскохозяйственных почвах при использовании удобрений, содержащих РЗЭ, или навоза животных, получавших добавки с металлами [6]. Лантаноиды в

почве и воде являются экотоксичными, так как могут поглощаться растениями и животными [7, 8].

Несмотря на то, что выбросы редкоземельных металлов вызывают загрязнение окружающей среды, исследования об их распространении, миграции и воздействии на экосистемы ограничены [5]. Большинство исследований по редкоземельным элементам сосредоточено на изучении геохимических процессов в природных системах [9], тогда как исследования, касающиеся содержания лантаноидов в осадках, воде, почве, а также их потенциальной биоаккумуляции в растениях, живых организмах, встречаются гораздо реже [10, 11]. В связи с вышесказанным, актуальны исследования, направленные на изучение распространения редкоземельных металлов в окружающей среде, а также их накопление в пищевой цепи [4].

Таким образом, целью нашего исследования являлось изучение содержания редкоземельных металлов в системе «снег-почва-овощи» в городских и пригородных садах и огородах. В рамках поставленной цели необходимо решить следующие задачи: определить содержание редкоземельных металлов в снеговом покрове, почве и овощах города Павлодар (1); выявить закономерности пространственного распределения содержания микроэлементов в исследуемых средах (городские и пригородные сады) (2); провести расчеты биоаккумуляции редкоземельных металлов из почвы в картофель и томаты, выращиваемые в городских и пригородных садах (3).

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Город Павлодар расположен на Северо-востоке Казахстана. Город Павлодар – многопрофильный промышленный центр. Общая площадь составляет 326882 га (0,3 тыс. км²). К наиболее крупным промышленным предприятиям относятся алюминиевый, машиностроительный, химический, нефтехимический, судостроительный, судоремонтный, заводы металлоконструкций и электромонтажных изделий и другие. Кроме того, на территории города расположены 3 теплоэлектростанции, более 20 котельных и 5751 единица частного домостроения, которым в год сжигается в общей сложности более 3,5 млн тонн угля. В черте г. Павлодар находится свыше 60,3 тыс. садовых участков и сотни огородов частных домо-владений [12].

Город расположен на первой аккумулятивной надпойменной террасе реки Иртыш. Терраса постепенно переходит в озерно-эллювиальную денудационную равнину в восточной части города. Почвы приурочены к зоне каштановых почв, по механическому составу являющиеся легкосуглинистыми почвами [13].

Отбор проб проводился в 2023 году в различных районах города и его промышленных зонах (северной и восточной), пригорода согласно стандартным методическим рекомендациям (рисунок 1) [14].

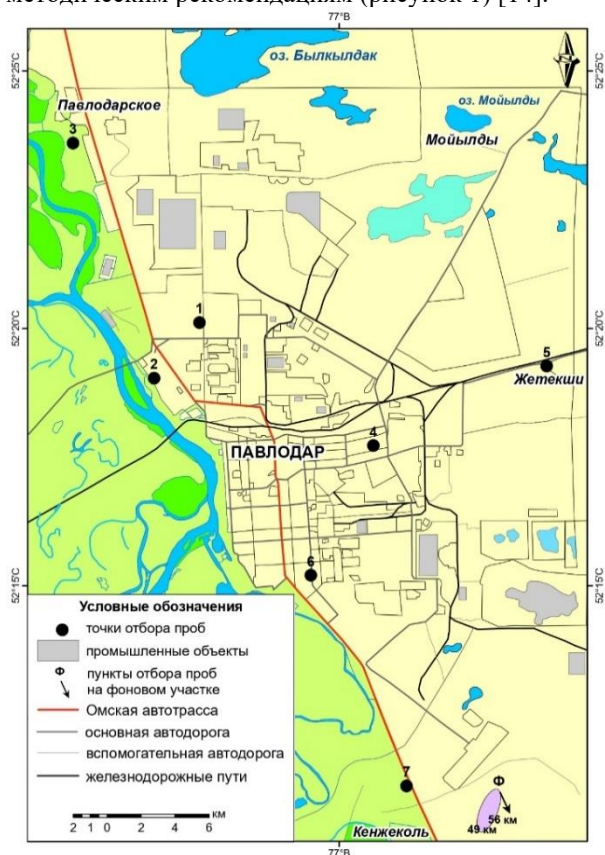


Рисунок 1. Расположение места отбора проб в городе Павлодар и пригороде. Участки 1, 2, 4, 6 – городские огороды; участки 3, 5, 7 – пригородные сады и огороды

В пределах города пробы снега и почв отбирались в зонах влияния крупных предприятий и объектов теплоснабжения, а также в садах и огородах. Пробы овощей отбирались на землях садово-дачных кооперативов и приусадебных участках, расположенных в городских и пригородных участках. Отбор проб снега осуществлялся в январе, при средней высоте снежного покрова – 60 см. Образцы почв отбирали с глубины 0–15 см. Отобрано и проанализировано по 32 проб снега и почвы, 16 проб овощей. На каждой пробной точке отбиралось по 2 образца: плоды томата (семейство Паслёновые (*Solanaceae*), *Solanum lycopersicum* L.) и клубни картофеля (семейство Паслёновые (*Solanaceae*), *Solanum tuberosum* L.) с целью определения накопления редкоземельных металлов в надземной и подземной частях растений. Выбор растений обусловлен повсеместным их возделыванием и значительной доле в рационе питания населения города. Фоновые пробы были взяты в более 50 км от города в противоположную сторону от преобладающих ветров.

Талая вода фильтровалась через фильтры обеззоленные «Синяя лента», специализированные фильтры для отделения от раствора мелкокристаллических осадков типа холодно-осаждённого сульфата бария, оксида меди и т.д. Полученный осадок после фильтрации талой воды просушивался, взвешивался и упаковывался для дальнейшей работы по определению содержания тяжелых металлов.

Пробы почвы весом не менее 1 кг просушивались на воздухе до воздушно-сухого веса. Влажные почвы сушились в сушильном шкафу при температуре 105 °C в течение 3–6 часов. Воздушно-сухие пробы просеивались через сито (полиамидное) с диаметром отверстий 1 мм. Методом квартования отбирался образец массой 200 г и истирался на дисковой мельнице «Pulverisette 9» (гарнитура – закаленная сталь) в течение 20 минут со скоростью вращения 1000 об/мин. Повторно отбирали из перемолотого гомогенного образца методом квартования навеску 50 г и дополнительно истирали в течение 20 минут.

Кислотное разложение образцов проводилось согласно методике № 499-АЭС/МС МКХА ГСИ РК за № KZ.07.00.03351-2016 во фторопластовых стаканах. Навеска каждого образца составляет 0,1 г. Вместе с анализируемыми образцами проводилось разложение одного контрольного образца, одного стандартного образца и одной холостой пробы. В каждый стакан перед началом разложения добавлялся раствор Nd, Dy, Yb с концентрацией 80, 50 и 30 мкг/л и ставился на плитку при температуре 130 °C. Далее в стаканы последовательно вносились и упаривались до влажных солей концентрированные кислоты HF, смесь HF:HNO₃ (3:1), HCl и HNO₃. После все образцы доводились 3М HNO₃, закрывались фторопластовыми крышками типа «часовое стекло» и прогревались 30 минут. Затем крышки снимались и растворы упаривались до появления интенсивных белых паров

при нагревании до 170–180 °С. Стаканы охлаждались, их стенки обмывались деионизированной H₂O. Полученные растворы снова упаривались до влажных солей. Затем в каждый стакан добавлялись HCl и H₃BO₃ и растворы упаривались до объема ≈0,7 мл. Полученные растворы переносились в вials с добавлением внутреннего стандарта In (1 мкг/л) и доводились нужного объема деионизированной H₂O. Перед проведением измерений все растворы разбавлялись деионизированной H₂O для лабораторного анализа в 10 раз.

Анализ содержания химических элементов в составе твердой фазы снега и почвы проводили методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой с использованием Agilent 7700 X ICP-MS согласно МВИ № 499-АЭС/МС МКХА «Методика количественного химического анализа. Определение элементного состава горных пород, почв, грунтов и донных отложений атомно-эмиссионным с индуктивно связанной плазмой и масс-спектральным с индуктивно связанной плазмой методами» KZ.07.00.03351-2016.

РАСТЕНИЯ

Подготовка проб растений проводилась при помощи системы микроволнового разложения Speedwave Xpert. Для микроволнового разложения использовались фторопластовые автоклавы DAP60. Вместе с анализируемыми образцами проводилось разложение одного контрольного образца, одного стандартного образца и одной холостой пробы. Навеска 400 мг помещалась в автоклав с добавлением 5 мл HNO₃ и 3 мл H₂O₂ (3 раза по 1 мл раз в 10 минут). Смесь встряхивалась или перемешивалась фторопластовой палочкой. После автоклавы закрывались и помещались в саму микроволновую систему разложения. Разложение проходило по параметрам, представленных в таблице 1.

Таблица 1. Метод микроволнового разложения

Шаг	T [°C]	P [bar]	Время нагрева [min]	Время разложения [min]	Мощность [%]
1	150	30	10	5	50
2	190	35	5	15	80
3	50	25	1	10	0

Во избежание пенообразования и разбрызгивания сосуды остужались до комнатной температуры (около 20 мин.). Полученные растворы переносились в вials и доводились до необходимого объема деионизированной H₂O. Перед проведением измерений все растворы разбавляют деионизированной H₂O для лабораторного анализа в 10 раз.

Таблица 2. Содержание редкоземельных металлов в снеговом и почвенном покровах, мг/кг

Элемент	La	Ce	Nd	Eu	Gd	Dy	Ho	Lu
Снег	27,9±7,8	54,1±9,9	26,9±5,4	1,4±0,3	5,8±1,3	5,0±1,1	0,8±0,2	0,3±0,1
Почвы	15,41±2,14	33,28±4,5	14,72±1,94	0,82±0,06	3,74±0,47	0,39±0,07	1,01±0,14	1,30±0,14

Примечания: *среднее содержание, **среднеквадратичное (стандартное) отклонение

Пробы растительных образцов были разложены методом микроволнового разложения с использованием методических рекомендаций Berhof (Speedware Xpert) и методической инструкции М-МВИ-2008. Анализ на химические элементы в воде и в растительных образцах согласно методике ГОСТ ISO 17294-2019 Качество воды. Использование масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой.

В ходе исследования было проанализировано содержание 8 редкоземельных металлов: La, Ce, Nd, Eu, Gd, Dy, Lu, Ho.

Коэффициент аккумуляции металлов в растениях (биологического поглощения – КБП) рассчитывался по формуле:

$$КБП = \frac{C_{растение}}{C_{почва}}, \quad (1)$$

где $C_{растение}$ – это концентрация металлов в растениях; $C_{почва}$ – это концентрация металлов в почве.

Диапазон определения согласно методике № 499-АЭС/МС (для элементов La,Ce,Nd,Eu,Gd,Dy,Lu,Ho): 0,01 до 4000 п·10⁻⁴, массовая доля, %. Пределы обнаружения согласно методике ГОСТ ISO 17294-2-2019 (для элементов La,Ce,Nd,Eu,Gd,Dy,Lu,Ho): 0,1 мкг/л.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Содержание редкоземельных металлов в твердой фазе снега, почве представлены в таблице 2. Наибольшие концентрации микроэлементов наблюдаются в твердой фазе снега, ряд убывания которых имеют следующий вид: Ce (54,1) > La (27,9) > Nd (26,9) > Gd (5,8) > Dy (5) > Eu (1,4) > Ho (0,8) > Lu (0,3). При анализе среднего содержания микроэлементов в твердой фазе снега было обнаружено, что содержание церия (Ce), лантана (La) и неодима (Nd) наиболее значимо. Содержание гадолиния и диспрозия составляет 5,8 и 5 мг/кг, соответственно, в то время как содержание лютеция минимально и составляет всего 0,3 мг/кг. Концентрация микроэлементов существенно варьировала между образцами в следующем диапазоне: La (18–57 мг/кг), Ce (38–79 мг/кг), Nd (19–40 мг/кг), Eu (0,9–2,3 мг/кг), Gd (4,2–9,5 мг/кг), Dy (3,5–7,9 мг/кг), Ho (0,6–1,3 мг/кг), Lu (0,2–0,5 мг/кг).

Ряд убывания среднего содержания редкоземельных металлов по городу Павлодар в почвах, имеет следующий вид: Ce (33,28) > La (15,41) > Nd (14,72) > Gd (3,74) > Lu (1,3) > Ho (1,01) > Eu (0,82) > Dy (0,39). Концентрация микроэлементов варьировала между образцами в следующем диапазоне: La (12–22 мг/кг), Ce (26–48 мг/кг), Nd (12–21 мг/кг), Eu (0,1–1,0 мг/кг), Gd (3–5,1 мг/кг), Dy (0,3–0,6 мг/кг), Ho (0,8–1,4 мг/кг), Lu (1,1–1,7 мг/кг).

При сравнении концентраций редкоземельных металлов в твердой фазе снега с данными по почвам выявлено, что содержание металлов в снеге значительно превышает их концентрации в почвах. Исключение составляют гольмий и лютеций, чьи концентрации в почве выше, чем в снежном покрове. Концентрация лютеция в почве превышает его содержание в снеге более чем в 4 раза. Концентрация диспрозия в твердой фазе снега почти в 13 раз выше, чем в почве, а концентрации остальных металлов (La, Ce, Nd, Eu, Gd) варьируются от 1,5 до 1,8 раз.

Наибольшее превышение концентраций в почвах города Павлодар наблюдается для следующих металлов: Lu (в 6,5 раза), Ho (в 3,3 раза) и Gd (в 2,3 раза) по сравнению с пахотным слоем сельскохозяйственных почв, исследованных в [15]. Однако концентрация Dy в Павлодаре оказалась ниже в 3,8 раза, чем представлено в исследовании. Превышение содержания остальных металлов варьируется от 1,4 до 1,8 раза. Концентрации редкоземельных металлов в почвах города Павлодар сопоставимы с данными исследований на техногенных землях и в районе воздействия Череповецкого металлургического комбината [15]. Исключением является лантан, концентрация которого в нашем исследовании оказалась в 1,6 раза ниже, а также лютеций (в 8 раз ниже) и гольмий (в 2,9 раза ниже). По сравнению с исследованиями, проведенными на территориях, прилегающих к автодорогам Польши [11], наши данные показывают более высокие концентрации металлов, что косвенно указывает на то, что загрязнение автотранспортом не является основным источником загрязнения рассматриваемых металлов.

При сравнении содержания редкоземельных металлов в снеговом покрове городских и пригородных огородов не отмечается значительной разницы (рисунок 2). Однако для концентраций лантаноидов в почвенном покрове наблюдается незначительная тенденция к превышению значений в городе.

Важно также отметить, что при определении коэффициента концентрации, то есть соотношения полученных данных к фоновым концентрациям лантаноидов, выявлено, что фоновые концентрации в снеговом покрове в среднем на 1,3 раза ниже городских. В то же время фоновые концентрации редкоземельных металлов в почвах практически идентичны городским.

Низкие концентрации РЗМ в почве по сравнению с концентрациями в твердых осадках (снегу) могут указывать на то, что эти металлы не задерживаются в почве и могут мигрировать в другие среды, такие как поверхностные воды, в результате таяния снега или дождя. Металлы могут быть мобильны в водных средах, особенно если они находятся в растворенной форме или прочно связаны с частицами, которые могут переноситься вместе с водой. Поэтому во время таяния снега или дождя металлы могут перемещаться с поверхности почвы в более глубокие слои почвы

или даже в прилегающие водные ресурсы [16]. Исследования также подтверждают, что большинство редкоземельных металлов могут адсорбироваться в почвах и отложениях благодаря их растворению и поверхностным комплексным реакциям с неорганическими и/или органическими лигандами [8].

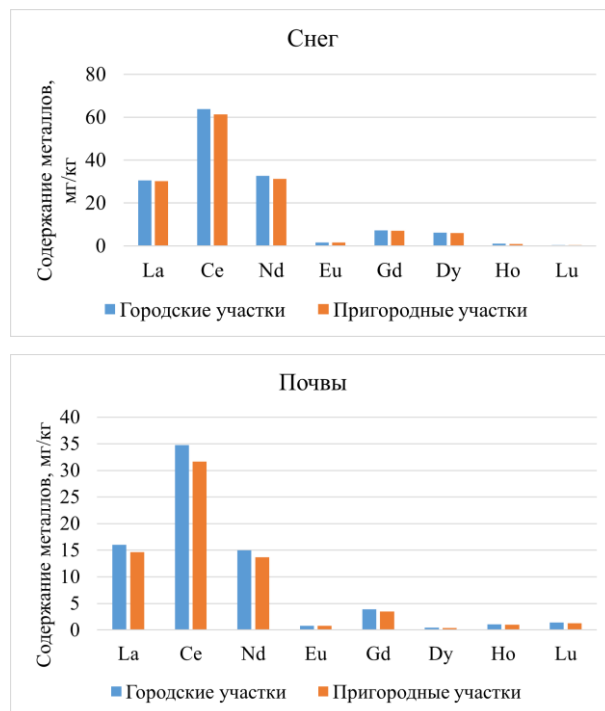


Рисунок 2. Содержание редкоземельных металлов в снеговом и почвенном покровах на различных территориях

При рассмотрении коэффициента биоаккумуляции лантаноидов в овощах, выращенных на исследуемых территориях, были получены следующие результаты (таблица 3, 4).

Таблица 3. Коэффициент аккумуляции РМ в овощах из почвенного покрова

Элемент	La		Ce	
	картофель	томат	картофель	томат
Коэффициент аккумуляции	0,002	0,00065	0,00093	0,0006

Большинство металлов, как в картофеле, так и в томатах, имеют очень низкий уровень накопления. Значения содержания Nd, Eu, Gd, Dy, Lu, Ho в овощах не превышают 0,01. Это указывает на то, что, несмотря на относительно высокие концентрации загрязнителей в почве, растения обладают механизмами, предотвращающими поступление этих металлов. Определяемые металлы La и Ce имеют очень низкие значения бионакопления, как для картофеля, так и для томата, хотя наблюдается незначительное превышения КБП для картофеля.

Таблица 4. Коэффициент аккумуляции РМ в овощах в пространственном аспекте

La					
<i>картофель</i>			<i>томат</i>		
всего	город	пригород	всего	город	пригород
0,03	0,017	0,04	0,01	0,012	менее 0,01
Ce					
<i>картофель</i>			<i>томат</i>		
всего	город	пригород	всего	город	пригород
0,06	0,031	0,081	0,02	0,018	0,018

Коэффициент биоаккумуляции незначительно варьируется между городскими и деревенскими садами. Наибольшая корреляция с распределением металлов в почве отмечается для картофеля. На коэффициент аккумуляции тяжелых металлов в томатах влияние произрастания в условиях города или деревни незначительное. Таким образом, наблюдается меньшая аккумуляция загрязняющих веществ из почв в наземные овощи и большая – в корнеплоды. Это может быть связано с высокой подвижностью этих металлов в почвах и их слабым удержанием по сравнению с другими токсичными элементами [17].

В сравнении с исследованиями по накоплению редкоземельных металлов в растениях на придорожных участках Польши [3], было установлено, что содержание лантана в надземных органах полыни обыкновенной на расстоянии 25 м от дороги составляет 0,08 мг/кг. В наших исследованиях содержание редкоземельных металлов в томатах составляет около 0,01 мг/кг, что в 8 раз меньше, чем в приведенных данных.

Источники загрязнения редкоземельными металлами

Исследований, посвященных загрязнению редкоземельными металлами окружающей среды недостаточно для формирования целостной картины поведения этих металлов в различных средах, а также влияния на здоровье людей, в том числе и посредством употребления в пищу овощей, выращенных в черте города. Некоторые исследования определяют недостаточные знания в области источников загрязнения РЗМ, миграции этих металлов, экотоксикологии, а также мер для минимизации экологических рисков [18]. В исследованиях 20-летней давности указано, что нормирования содержания редкоземельных металлов не имеется, их экотоксикологические свойства плохо изучены, возможно из-за отсутствия чувствительных и надежных количественных аналитических методов определения РЗМ [19].

С точки зрения геологии редкоземельные металлы не являются редкими по отношению к их содержанию в земной коре. Однако концентрированные залежи встречаются не часто [20].

Предполагаемая средняя концентрация РЗМ в земной коре составляет ≈ 250 мкг/г, что превышает

концентрацию многих других известных металлов. Се является наиболее распространенным среди редкоземельных металлов, что также подтверждается нашими исследованиями. В исследованиях [4] представлено, что Се, являющийся достаточно распространенным элементом (среднее содержание 67 мкг/г), более распространен, чем медь (55 мкг/г).

Что касается источников загрязнения металлами, то известно, что РЗМ выбрасываются из множества точечных и диффузных источников, включая медицинские и исследовательские учреждения, фармацевтическую промышленность, горнодобывающую и перерабатывающую промышленность, отходы электроники, электрооборудования, заводы по переработке РЗЭ, высокотехнологичные отрасли, удобрения и корма для скота [18].

Проанализировав литературные источники, было выявлено, что потенциальные источники попадания РЗМ в окружающую среду в городе Павлодар, могут быть ТЭЦ, работающие на сжигании угля, а также алюминиевое производство (алюминиевый и гидролизный заводы). В трудах [21] опубликовано, что в качестве сырья для получения редкоземельных металлов могут использоваться угольные месторождения, поскольку концентрации этих металлов во многих углях или угольной золе равны или во много раз выше, чем те, которые содержатся в обычных рудах РЗМ [21]. В качестве источника поступления РЗМ в окружающую среду может быть летучая зола. В исследованиях [22] при анализе золы на содержание редкоземельных металлов оказалось, что их содержание составляет 159,9 мкг/г. В целом, мировая угольная летучая зола содержит 445 мкг/г РЗМ и имеет потенциал быть источником этих металлов [23].

Шлам, который является отходом производства глинозема (оксида алюминия) из бокситов также может быть потенциальным источником поступления РЗМ. РЗМ были обнаружены в значительных количествах в красном шламе и могут достигать 500–1700 мкг/г [24].

Выводы

При анализе среднего содержания микроэлементов в твердой фазе снега было обнаружено, что содержание лантана (27,9 мг/кг) и церия (54,1 мг/кг) наиболее значимо. В почвах Павлодара, где выращиваются овощи, средние концентрации редкоземельных металлов убывают в следующем порядке: $Ce > La > Nd > Gd > Lu > Ho > Eu > Dy$. Сравнение показало, что содержание металлов в снегу значительно превышает их концентрации в почвах, кроме гольмия и лютеция. Коэффициент биоаккумуляции для овощей показал, что большинство металлов для картофеля и томатов относятся к незначительному уровню накопления как в городе, так и в пригороде. Однако необходимы дальнейшие исследования, направленные на изучение влияния редкоземельных металлов на растения, здоровья человека, а также их дальнейшую миграцию. В заключение следует отметить, что

присутствие редкоземельных металлов в снеге, почве и растениях может иметь последствия для окружающей среды и здоровья человека. Понимание путей загрязнения, поведения этих элементов в различных экологических средах и реализация эффективных стратегий рекультивации имеют важное значение для смягчения неблагоприятных последствий загрязнения редкоземельными металлами.

Работа выполнена в рамках проекта ИРН AP15473194 «Оценка накопления и распределения микроэлементов в атмосферных выпадениях (снеговой покров), почвах и овощных культурах урбанизированных территорий г. Павлодар» при финансовой поддержке Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Brouziotis, A. A., Giarra, A., Libralato, G., Pagano, G., Guida, M., & Trifuoggi, M. Toxicity of rare earth elements: an overview on human health impact // *Frontiers in Environmental Science*. – 2022. – No. 10. <https://doi.org/10.3389/fenvs.2022.948041>
2. Li, L. J., Huang, X., & Wei, H. The effect of re on the microstructure and properties of weld of 7075 aluminum alloy // *Applied Mechanics and Materials*. – 2013. – No. 456. – P. 521–524. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/amm.456.521>
3. Mleczek, P., Borowiak, K., Budka, A., Szostek, M., Niedzielski, P. Possible sources of rare earth elements near different classes of road in Poland and their phytoextraction to herbaceous plant species // *Environmental Research*. – 2021. – No. 193. – P. 110580. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.110580>
4. Balaram, V. Rare earth elements: A review of applications, occurrence, exploration, analysis, recycling, and environmental impact // *Geoscience Frontiers*. – 2019. – No. 10(4). – P. 1285–1303. <https://doi.org/10.1016/j.gsf.2018.12.005>
5. Arienzo, Monica M., Saftner, D., Bacon, S. N., Robtoy, E., Neveux, I., Schlauch, K., Carbone, M., Grzymalski, J. Naturally occurring metals in unregulated domestic wells in Nevada, USA // *Science of The Total Environment*. – 2022. – No. 851(2). – P. 158277. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.158277>
6. Tommasi, F., Thomas, P. J., Pagano, G., Perono, G. A., Oral, R., Lyons, D. M., et al. Review of Rare Earth Elements as Fertilizers and Feed Additives: A Knowledge Gap Analysis // *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*. – 2021. – No. 81(4). – P. 531–540. <https://doi.org/10.1007/s00244-020-00773-4>
7. Turra, C. Sustainability of rare earth elements chain: from production to food-a review // *International Journal of Environmental Health Research*. – 2018. – No. 28. – P. 23–42. <https://doi.org/10.1080/09603123.2017.1415307>
8. Adeel, M., Lee J. Y., Zain, M., Rizwan, M., Nawab, A., Ahmad, M.A., Shafiq, M., Yi, H., Jilani, G., Javed, R., Horton, R., Rui, Y., Tsang, D.C.W., Xing, B. Cryptic footprints of rare earth elements on natural resources and living organisms // *Environment International*. – 2019. – No. 127. – P. 785–800. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.03.022>
9. Han, R. and Xu, Z. Geochemical behaviors of rare earth elements (rees) in karst soils under different land-use types: a case in Yinjiang karst catchment, Southwest China // *International Journal of Environmental Research and Public Health*. – 2021. – No. 18(2). – P. 502. <https://doi.org/10.3390/ijerph18020502>
10. Bakhshalizadeh, Shima & Liyafoyi, Adeleh & Mora Medina, Rafael & Ayala-Soldado, Nahúm. Bioaccumulation of rare earth elements and trace elements in different tissues of the golden grey mullet (*Chelon auratus*) in the southern Caspian Sea // *Environmental Geochemistry and Health*. – 2023. – No. 45. – P. 1–10. <https://doi.org/10.1007/s10653-023-01593-w>
11. Mleczek, P., Borowiak, K., Budka, A., Niedzielski, P. Relationship between concentration of rare earth elements in soil and their distribution in plants growing near a frequented road // *Environ Sci Pollut Res Int*. – 2018. – P. 23695–23711. <https://doi.org/10.1007/s11356-018-2428-x>
12. Гельдымамедова, Э. А. Тяжелые металлы в почвах г. Павлодар Республики Казахстан: дис... канд. биол. наук: 03.00.16. Павлодар, 2007. – 215 с. [Gel'dymamedova, E. A. Tyazhelye metally v pochvakh g. Pavlodar Respubliki Kazakhstan: dis... kand. biol. nauk: 03.00.16. Pavlodar, 2007. – 215 p. (In Russ.)]
13. Агроклиматические ресурсы Павлодарской области: научно-прикладной справочник / Под ред. С.С. Байшоланова – Астана, 2017. – 127 с. [Agroklimateicheskie resursy Pavlodarskoy oblasti: nauchno-prikladnoy spravochnik / Pod red. S.S. Baysholanova – Astana, 2017. – 127 p. (in Russ.)]
14. Методические рекомендации по проведению полевых и лабораторных исследований почв при контроле загрязнения окружающей среды металлами. – М.: Метеоиздат, 1982. – 109 с. [Metodicheskie rekomendatsii po provedeniyu polevykh i laboratornykh issledovaniy pochv pri kontrole zagryazneniya okruzhayushchey sredy metallami. – Moscow: Meteoizdat, 1982. – 109 p. (In Russ.)]
15. Ладонин, Д. В. Формы соединений тяжелых металлов в техногенно-загрязненных почвах. – М.: Издательство Московского университета, 2019. – 312 с. [Ladonin, D. V. Formy soedineniy tyazhelykh metallov v tekhnogenno-zagryaznennykh pochvakh. – Moscow: Izdatel'stvo Moskovskogo universiteta, 2019. – 312 p. (In Russ.)]
16. Kurochkin, I., Chugay, N., Kulagina, E. The assessment of soil contamination with heavy metals in the Vladimir city // *E3S Web Conf*. – 2021. – P. 03005. <https://doi.org/10.1051/e3sconf/202126503005>
17. Orisakwe, O.E., Dagur, E.A., Udowelle, N.A. Lead levels in vegetables from Artisanal Mining sites of Dilimi River, Bukuru and Barkin Ladi North Central Nigeria: Cancer and Non-Cancer Risk Assessment // *Asian Pac. J. Cancer Prev*. – 2017. – No. 18(3). – P. 621–627.
18. Gwenzi, W., Mangori, L., Danha, C., Chaukura, N., Dunjana, N., Sanganyado, E. Sources, behavior, and environmental and human health risks of high-technology rare earth elements as emerging contaminants // *Science of The Total Environment*. – 2018. – No. 636. – P. 299–313. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.04.235>
19. Petrovic, M., Gonzalez, S. and Barcelo, D. Analysis and Removal of Emerging Contaminants in Wastewater and Drinking Water // *TrAC Trends in Analytical Chemistry*. – 2003. – No. 22. – P. 685–696. [https://doi.org/10.1016/S0165-9936\(03\)01105-1](https://doi.org/10.1016/S0165-9936(03)01105-1)

20. Chakhmouradian, A. R. and Wall, F. Rare earth elements: minerals, mines, magnets and more // Elements. – 2012. – No. 8(5). – P. 333–340. <https://doi.org/10.2113/gselements.8.5.333>
21. Zhang, W., Noble, A., Yang, X. and Honaker, R. A comprehensive review of rare earth elements recovery from coal-related materials // Minerals. – 2020. – No. 10. – P. 451. <https://doi.org/10.3390/min10050451>
22. Baron, R. Determination of rare earth elements in power plant wastes // Mining Machines. – 2020. – No. 4(164). – P. 24–30. <https://doi.org/10.2478/mspe-2020-0034>
23. Franus, W., Wiatros-Motyka, M. M. and Wdowin, M. Coal fly ash as a resource for rare earth elements // Environmental Science and Pollution Research. – 2015. – No. 22(12). – P. 9464–9474. <https://doi.org/10.1007/s11356-015-4111-9>
24. Akcil, A., Akhmediyeva, N., Abdulvaliyev, R., Abhilash and Meshram, P. Overview on extraction and separation of rare earth elements from red mud: focus on scandium // Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review. – 2018. – No. 39(3). – P. 145–151. <https://doi.org/10.1080/08827508.2017.1288116>

ПАВЛОДАР ҚАЛАСЫ МЕН ҚАЛА МАҢЫНДАҒЫ «ҚАР ЖАМЫЛҒЫСЫ – ТОПЫРАҚ ЖАМЫЛҒЫСЫ – ӨСІМДІК ЖАМЫЛҒЫСЫ» ЖҮЙЕСІНДЕГІ СИРЕК ЖЕР МЕТАЛДАРЫНЫҢ ЛАСТАНУЫН БАҒАЛАУ

А. А. Фаурат*, Г. С. Ажаев

Торайғыров университеті, Павлодар, Қазақстан

** Байланыс үшін E-mail: Alina03.09@mail.ru*

Мақалада Павлодар қаласының қалалық және қала маңындағы бау-бақша учаскелеріндегі сирек жер металдарымен ластану деңгейі зерттеледі. Жауын – шашын (қар) – топырақ-көкөністер жүйесіндегі лантаноидтардың ластануына басты назар аударылады: қарда металдардың жиналуы, олардың топыраққа қоныс аударуы және өсімдіктерде жинақталуы. Павлодар индустриалды дамыған қала ретінде өнеркәсіптік кәсіпорындар, көлік және пеш жылыту шығарындыларының әсеріне ұшырайды, бұл оны сирек жер металдарымен ластануға осал етеді. Нәтижелер қардың қатты фазасындағы зерттелетін элементтердің концентрациясы келесі ретпен төмендейтінін көрсетеді (мг/кг): Ce (54,1) > La (27,9) > Nd (26,9) > Gd (5,8) > Dy (5) > Eu (1,4) > Ho (0,8) > Lu (0,3). Топырақта металл концентрациясы ретімен төмендейді (мг / кг): Ce (33,28) > La (15,41) > Nd (14,72) > Gd (3,74) > Lu (1,3) > Ho (1,01) > Eu (0,82) > Dy (0,39). Қардағы металдардың мөлшері топырақтағы концентрациядан едәуір жоғары екендігі анықталды, тек гольмий мен лютецийді қоспағанда, олардың концентрациясы топырақта жоғары. Қар жамылғысындағы фондық концентрациялар қалалықтардан орта есеппен 1,3 есе төмен. La және Ce металдары картоп пен қызанақ үшін өте төмен жинақтау мәндеріне ие, дегенмен картоп үшін Био жинақтау коэффициентінің шамалы асып кетуі байқалады. Бұл деректер ластануды азайту және халықтың денсаулығын сақтау шараларын әзірлеу үшін маңызды.

Түйін сөздер: сирек жер металдары, қар жамылғысы, топырақтың ластануы, биоаккумуляция, бау-бақша учаскелері.

ASSESSMENT OF RARE EARTH METALS POLLUTION IN THE SNOW COVER-SOIL COVER-VEGETATION SYSTEM IN THE TERRITORY OF THE CITY OF PAVLODAR AND ITS SUBURBS

A. A. Faurat*, G. S. Azhayev

Toraighyrov University, Pavlodar, Kazakhstan

** E-mail for contacts: Alina03.09@mail.ru*

The article studies the level of rare earth metal pollution in urban and suburban garden plots of the city of Pavlodar. The main attention is paid to lanthanide pollution in the system “precipitation (snow) – soil – vegetables”: accumulation of metals in snow, their migration to soil and accumulation in plants. Pavlodar, as an industrially developed city, is exposed to emissions from industrial enterprises, transport and stove heating, which makes it vulnerable to rare earth metal pollution. The results show that the concentrations of the investigated elements in the solid phase of snow decrease in the following order (mg/kg) Ce (54.1) > La (27.9) > Nd (26.9) > Gd (5.8) > Dy (5) > Eu (1.4) > Ho (0.8) > Lu (0.3). In soils, metal concentrations decreased in the following order (mg/kg) Ce (33.28) > La (15.41) > Nd (14.72) > Gd (3.74) > Lu (1.3) > Ho (1.01) > Eu (0.82) > Dy (0.39). It was found that the content of metals in snow significantly exceeds their concentrations in soil, except for holmium and lutetium, whose concentrations are higher in soil. Background concentrations in the snow cover are on average 1.3 times lower than urban concentrations. The metals La and Ce have very low accumulation values for both potato and tomato, although there is a slight excess of the bioaccumulation factor for potato. These data are important for the development of measures to reduce pollution and protect public health.

Keywords: rare earth metals, snow cover, soil contamination, bioaccumulation, garden plots.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-43-53>

УДК 621.039.59

МЕТОДИКА ПОДБОРА СОСТАВА ЦЕМЕНТНОЙ МАТРИЦЫ ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ ОБЛУЧЕННОГО УРАН-ГРАФИТОВОГО ТОПЛИВА

О. С. Буккина^{1,2*}, Ю. Ю. Бакланова¹, М. Н. Азбергенов¹, М. А. Кукса¹

¹⁾ Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

²⁾ Университет имени Шакарима города Семей, Семей, Казахстан

* E-mail для контактов: bukina@nnc.kz

Импульсный графитовый реактор ИГР является уникальной в своем роде ядерной установкой в мире. Активная зона исследовательского реактора представляет собой кладку уран-графитовых блоков (твэлов) с обогащением 90 масс. % по изотопу ^{235}U . В рамках конверсии реактора ИГР на низкообогащенное топливо, специалистами института была изучена возможность иммобилизации первой активной зоны в цементной матрице.

Исследования процесса иммобилизации включали как формирование технических требований к матрице уран-графитового топлива, определенных условиями конверсии, международными и национальными стандартами, так и подбор состава и соотношений компонентов матрицы.

В статье приводятся результаты анализа современных достижений в области иммобилизации радиоактивных отходов и облученного графита, формирования критериев приемлемости матрицы для иммобилизации высокообогащенного топлива ИГР, методики определения соответствия свойств матрицы установленным критериям.

Составы матрицы для иммобилизации облученного топлива реактора ИГР были подобраны опытным путем, исходя из таких характеристик цементного раствора, как водоотделение, вязкость, время схватывания, равномерность изменения объема, однородность и прочность образцов. Для определения вышеуказанных характеристик применялись и усовершенствовались методики, применяемые к определению характеристик цементных растворов. Они показали свою состоятельность.

Требования, применяемые для подбора состава матриц для иммобилизации отработавшего уран-графитового топлива реактора ИГР, оказались применимыми и достаточно конструктивными, а также могут быть рекомендованы для решения задач по подбору консистенции матриц для иммобилизации и других видов РАО.

Ключевые слова: исследовательский реактор, реактор ИГР, уран-графитовое топливо, иммобилизация, матрица, РАО.

ВВЕДЕНИЕ

Импульсный графитовый реактор (далее ИГР) является исследовательским реактором, активная зона которого состоит из уран-графитовых твэлов с обогащением 90% по изотопу ^{235}U . В рамках конверсии реактора ИГР на низкообогащенное топливо, изучается возможность иммобилизации первой активной зоны, которая была извлечена из реактора в 1967 году. За время работы топливо получило дозу $4 \cdot 10^{18}$ н/см² (флюэнс тепловых нейтронов). Суммарная активность по ^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{151}Sm составляет около $1 \cdot 10^5$ кБк/кг. Расчетное значение степени выгорания ВОУ топлива составило менее 1 % масс. по изотопу ^{235}U [1].

Исследования процесса иммобилизации включали как формирование технических требований к матрице уран-графитового топлива, определенных условиями конверсии, международными [2–4] и национальными стандартами [5, 6], так и подбор состава и соотношений компонентов матрицы.

Опыта обращения с облученным уран-графитовым топливом высокого обогащения в мире не было, поэтому в качестве возможных методов иммобилизации такого топлива рассматривались методы, применяемые к радиоактивным отходам (РАО). В процессе анализа существующих методов иммобилизации бы-

ли рассмотрены технологии остекловывания [7, 8], заключения в полимерную и геополимерную матрицу [9], битумирования [10, 11] и цементирования [12].

Мировой опыт показывает, что цементные или бетонные матрицы для твердых РАО применяются довольно часто. Цементация радиоактивных отходов в мире практикуется в основном для иммобилизации отходов низкого и среднего уровня активности. Основные преимущества данного метода заключаются [3] в: общедоступности цемента; простой и недорогой технологии, которая реализуется при температуре окружающей среды. Кроме того, цементная матрица действует как диффузионный барьер и обеспечивает места сорбции и реакции; подходит для шламов, растворов, эмульгированных органических жидкостей и сухих твердых веществ; отходы имеют хорошую термическую, химическую и физическую стабильность; щелочная химия обеспечивает низкую растворимость для многих ключевых радионуклидов; форма отходов не воспламеняется; форма отходов не разрушается радиацией и обеспечивает хорошую самоизоляцию; форма отходов имеет хорошую прочность на сжатие, что облегчает обработку; легко обрабатывается удаленно; цемент универсальный и

может быть модифицирован для конкретного вида отходов.

Главным недостатком цементации РАО является увеличение объема отходов, но в данном случае рассматривается возможность вывода топлива из-под гарантий МАГАТЭ и его захоронение, поэтому надежная матрица остается в приоритете. Условия прекращения применения гарантий МАГАТЭ в отношении ядерного материала следующие [13]:

- максимальная концентрация ^{235}U в матрице – 50 г/т;
- однородный состав компонентов с размером частиц ≈ 200 мкм;
- технология иммобилизации топлива должна быть необратимым процессом и, следовательно, обеспечивать перевод урана в непригодное состояние для дальнейшего его использования в ядерных целях.

Ввиду того, что цемент является химически активным веществом и в процессе гидратации происходит интенсивное тепловыделение, которое может являться причиной растрескивания матрицы, в качестве наполнителей (модификаторов) были выбраны зола-уноса и доменный шлак. Выбор модификаторов был обусловлен тем, что они обеспечивали создание однородной структуры матрицы в отличие от стандартных наполнителей в виде песка или гравия.

Главной задачей исследования являлось - выбор состава матрицы на основе цемента и определение соотношений компонентов матрицы для иммобилизации уран-графитового топлива.

Результатом работ будет являться готовая матрица, представляющая собой однородный цементный компаунд с включенными в него жидкими или твердыми радиоактивными отходами [6]. Прочность матрицы должна обеспечивать целостность матрицы при транспортировке и хранении. В последующих исследованиях пригодность такой матрицы для долговременного хранения или захоронения будет оцениваться по соответствию технологическим требованиям, определенным международными [2–4] и государственными стандартами [5, 6].

Методы

Методика подготовки компонентов матрицы

На этапе входного контроля компонентов матрицы проводится анализ фракционного состава цемента, золы-уноса и доменного шлака. Фракционный состав материалов определяется рассевом с помощью вибрационного ситового грохота ANALYSETTE 3.

Для изготовления раствора выполняется измельчение графита (имитатора топлива реактора ИГР) и доменного шлака на щековой дробилке PULVERISETTE 1 и дисковой мельнице PULVERISETTE 3 до заданных размеров.

Методика подготовки цементного раствора

Изготовление цементного раствора должно осуществляться при соблюдении ряда технологических требований [4]:

- для исключения появления жидких РАО, ограничивается водоотделение растворов, которое не должно превышать 3 об. %;
- для достижения однородности раствора, время его схватывания должно быть достаточным для качественного смешивания компонентов матрицы и составлять не менее 3 часов;
- при застывании цементный раствор не должен существенно изменять объем;
- избыток тепловыделения при гидратации или неэффективный отвод тепла должны быть исключены;
- структура раствора должна быть однородной, то есть отсутствовать расслоения или недоуплотнения смеси, локальные скопления компонентов или крупные поры.

Растворы цементных матриц для подбора параметров должны изготавливаться по установленному алгоритму:

- 1) отмерить массу каждого компонента, согласно установленным пропорциям;
- 2) налить воду в чашу для смешивания, затем последовательно добавить специальную добавку, имитатор топлива (графит) и цемент;
- 3) выполнить смешивание с помощью автоматического смесителя раствора ELE 39-0045 по стандартному режиму оборудования для перемешивания цементного раствора (режим по стандарту EN 196-3: работа смесителя 90 с на малой скорости, остановка на 20 с, продолжение работы смесителя еще 90 с на малой скорости. Общее время работы смесителя в этом режиме 200 с, включая 20 с на остановку) до получения однородной консистенции раствора;
- 4) выполнить испытания цементного раствора.

Методика определения вязкости цементного раствора

Процесс гидратации портландцемента протекает самопроизвольно даже под водой, поэтому портландцементы называют «гидравлическими» цементами. Все, что необходимо для достижения прочности - это не трогать свежий раствор. Однако содержание воды в смеси имеет решающее значение для получения прочной и долговечной матрицы. Обычно это выражается как отношение массы воды к цементу (В/Ц). Для пластичности обычно требуется соотношение воды и цемента $>0,35$, но это отношение можно увеличить почти до 1,0 и все равно получить затвердевший продукт, хотя он будет довольно пористым [14]. Проблемы возникают при высоких соотношениях В/Ц: более плотные компоненты могут расслаиваться и может появиться жидкая вода (цементное молоко); прочность уменьшится, а пористость и проницаемость увеличатся.

Большая часть воды, добавляемой в цемент, переходит в гидраты. Таким образом, цемент набирает прочность не за счет высыхания, а за счет химических реакций. Критическое соотношение В/Ц, при превышении которого останется неизрасходованная вода, составляет ~0,3–0,35. Любая неиспользованная вода остается в порах и приводит к повышению «рН». Строго говоря, рН не цемента, а жидкости в порах. Поровую жидкость можно извлечь из затвердевшего цемента путем прессования в мощном гидравлическом прессе. Современные цементы достигают 80–90% гидратации за 30 дней и почти полной гидратации в течение года.

Для оптимизации соотношения В/Ц вязкость раствора определять через установление консистенции раствора. Для оценки консистенции раствора использовать встряхивающий столик, форму-конус и штыковку в соответствии с методикой по ГОСТ [15].

Форма-конус с центрирующим устройством устанавливать на диск встряхивающего столика. Внутреннюю поверхность конуса и диск столика перед испытанием протереть влажной тканью.

Предварительно подготовленный цементный раствор выложить в форму-конус на половину высоты и уплотнить металлической штыковкой. Затем конус заполнить раствором с небольшим избытком и уплотнить штыковкой. После уплотнения верхнего слоя избыток раствора удалить ножом, до уровня краев конуса. Затем конус снять в вертикальном направлении. Раствор встряхнуть на столике 30 раз за (30±5) секунд, после чего штангенциркулем измерить диаметр конуса по нижнему основанию в двух взаимно перпендикулярных направлениях. За растекаемость конуса принять среднее значение.

Предельное минимальное значение растекаемости конуса принять равным 150 мм (очень густой раствор). Предельное максимальное значение растекаемости конуса принять равным 250 мм (жидкий раствор). Растекаемость конуса в указанных пределах позволит получить цементное тесто приемлемой густоты.

Методика определения водоотделения цементного раствора

Водоотделение цемента – это количество воды, отделившейся при расслоении цементного теста, хранившегося в нормированных условиях, вследствие седиментационного осаждения частиц цемента.

Для определения водоотделения применить адаптированный метод на основе ГОСТа для строительных цементных растворов [16]. Выполнить по два параллельных измерения водоотделения для каждого состава. Итоговое значение водоотделения принять как среднее из двух полученных значений.

Определение водоотделения провести в следующем порядке: приготовленный для испытания цементный раствор поделить на две части, примерно равной массы; две части раствора поместить в индивидуальные, тарированные по массе, градуирован-

ные для измерения объема, стаканы; провести взвешивание пробы; рассчитать начальный объем по шкале и отметить начальный уровень раствора в стакане; в течение 2-х часов провести отстаивание раствора (неподвижное состояние, отсутствие толчков и встряхиваний); отметить снижение уровня раствора через 2 часа и каждые последующие 30 минут; выполнить замер выделившейся воды на поверхности цементного раствора; собрать воду с поверхности раствора и провести контроль объема выделившейся воды.

Коэффициент водоотделения (объемный) (K_v) в процентах вычислить по формуле:

$$K_v = \frac{a-b}{a} \cdot 100 = \frac{c}{a} \cdot 100, \quad (1)$$

где a – первоначальный объем цементного теста, см³; b – объем осевшего цементного теста, см³, c – объем отделившейся воды, см³.

Для исключения появления жидких радиоактивных отходов в технологическом процессе, водоотделение растворов не должно превышать 3 об. %.

Методика определения времени схватывания цементного раствора

Схватывание цементного раствора занимает от 2 до 24 часов и зависит от свойств цементной смеси и температуры окружающей среды. Определение времени схватывания провести в соответствии со стандартом по определению нормальной густоты, сроков схватывания и равномерности изменения объема цементного раствора [17].

Заранее подготовленное цементное тесто поместить в кольцо прибора Вика в один прием и встряхнуть 5–6 раз, постукиванием пластинкой о твердое основание. Выровнять поверхность раствора с краями кольца, путем среза избытка раствора ножом, протертым влажной тканью.

Иглу прибора Вика довести до соприкосновения с поверхностью цементного теста, уложенного в кольцо, стержень закрепить в этом положении с помощью стопора. Затем крепление стержня ослабить, позволяя игле свободно погрузиться в раствор.

Момент начала схватывания определить при свободном опускании иглы. Иглу погружать в раствор через каждые 10 мин, кольцо после каждого погружения передвигать для того, чтобы игла не попадала в прежнее место. После каждого погружения иглу протирать.

Во время испытания прибор должен находиться в затененном месте, без сквозняков, и не подвергаться сотрясениям.

Началом схватывания цементного раствора, в соответствии со стандартом [17], считать время, прошедшее от начала затворения (момент залива воды в раствор) до того момента, когда игла не доходит до пластинки на 2–4 мм. Концом схватывания цементного раствора считать погружение иглы на глубину не более чем на 1–2 мм.

Время схватывания определяет возможную длительность смешивания компонентов цементного раствора. Для достижения гомогенности раствора, время схватывания не должно быть менее 3 часов.

Методика определения равномерности изменения объема цементного раствора

Равномерность изменения объема цемента - свойство цемента в процессе твердения образовывать цементный камень, деформация которого не превышает значений, установленных нормативным документом [17].

Определение равномерности изменения объема произвести по методике, описанной в стандарте [17].

Выполнить отбор двух навесок цементного теста из замеса цементного раствора массой по 75 г. Навески поместить на стеклянную пластинку, предварительно протертую машинным маслом. Сформировать образцы диаметром 7–8 см и толщиной в середине около 1 см. Поверхность образцов сгладить смоченным в воде ножом (шпателем) от наружных краев к центру до образования острых краев и гладкой закругленной поверхности.

В случае, когда наблюдается жидкая консистенция раствора, и сформировать образцы заданного размера не удастся, раствор выложить на стеклянную пластинку с помощью шпателя до достижения нужной массы.

Образцы выдерживать в течение (24 ± 2) ч. с момента изготовления в ванне с гидравлическим затвором. По истечении этого времени образцы извлечь из ванны и снять со стеклянных пластинок. Для возможности наблюдения изменения объема, фиксировать контур каждого образца на бумаге.

Выполнить кипячение образцов матрицы в баке с водой. Кипение поддерживать в течение 3 ч. По истечении 3 ч образцы в бачке охладить. Сразу после извлечения из бачка произвести внешний осмотр образцов, выполнить фотографирование каждого образца с двух сторон и фиксировать контур образцов после кипячения. Оценку искривления образцов выполнить при помощи линейки, которую требуется приложить к плоской поверхности образца, при этом обнаруживаемые искривления не должны превышать 2 мм.

Цементное тесто соответствует требованиям стандарта в отношении равномерности изменения объема, если на лицевой стороне образцов не обнаружено радиальных, доходящих до краев, трещин или сетки мелких трещин, видимых невооруженным глазом или в лупу, а также каких-либо искривлений и увеличения объема образцов.

Методика определения прочности образцов цементного раствора

Определение прочности состоит в измерении минимальных усилий, разрушающих образцы матрицы

при их статическом нагружении, с постоянной скоростью нарастания нагрузки, и последующем вычислении напряжений при этих усилиях.

Образцы цементной матрицы изготавливать в соответствии со стандартом на определение прочности [18]. Для изготовления образцов использовать поверенные (калиброванные) формы, соответствующих требованиям [19], обеспечивающие после распалубливания размеры образцов $100 \times 100 \times 100$ мм.

Образцы до распалубливания хранить в формах, покрытых влажной тканью и полиэтиленом, что исключает испарение из них влаги, в помещении с температурой воздуха (20 ± 5) °С. Распалубливание образцов производить не ранее чем через 24 ч и не позднее чем через 72 ч в соответствии с требованиями ГОСТ [18].

Перед испытанием на сжатие образцы подвергать визуальному осмотру, установить наличие дефектов в виде трещин, сколов ребер, раковин и инородных включений. Перед испытанием на механическую прочность определить среднюю плотность образцов стандартным методом [20].

Определение прочности образцов производить с помощью гидравлического пресса ADR TOUCH CONTROL PRO. После распалубливания образцы выдерживать необходимое время в пластиковых контейнерах с постоянной влажностью и температурой (20 ± 5) °С. Затем провести испытания образцов на прочность через 3, 5, 7 (8, 9), 14, 21, 28 (30) суток. Проектным возрастом для испытаний прочности на сжатие считать возраст 28 дней со дня изготовления.

Для образцов цементной матрицы прочность на сжатие образцов матрицы должна превышать значения 10 МПа в возрасте 28 суток.

Методика определения однородности цементного раствора

Однородность структуры образцов определять на образцах размером $100 \times 100 \times 100$ мм с золой-уноса с разным количеством воды затворения.

Распределение графита в цементной матрице оценить с помощью оптической микроскопии. Для изучения микроструктуры исследуемых образцов матрицы применить оптический микроскоп Olympus BX-41M с диапазоном увеличения $\times 1,25 - \times 100$. Изучение структуры материала проводить на образцах, прошедших испытание на равномерность изменения объема. Исследуемые поверхности предварительно отшлифовать. На оптическом микроскопе получить изображения структуры материала при увеличении $\times 10$. Исследовать площадь каждого образца, проверяется их однородность и пористость.

Требования к однородности смеси – не должно быть расслоения и недоуплотнения смеси. Не должно быть локального скопления компонентов. Пористость образцов должна быть минимальна.

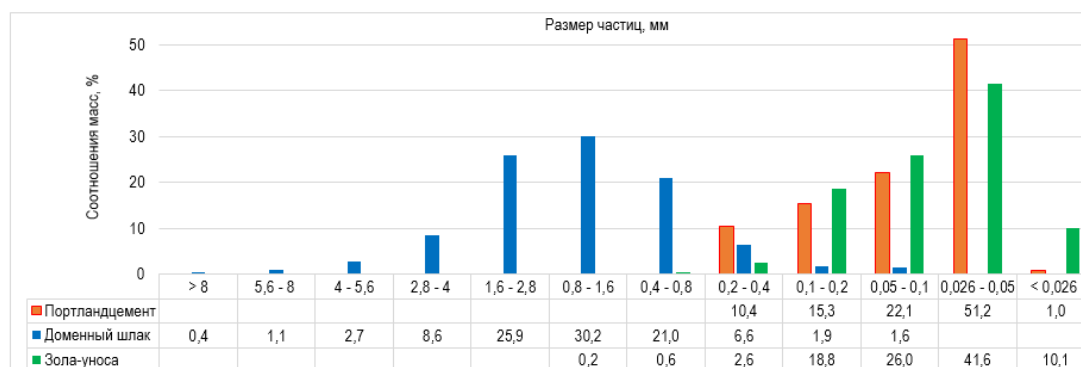


Рисунок 1. Сравнение фракционного состава портландцемента, золы-уноса и доменного шлака

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результат фракционирования цемента с маркировкой «Super 500» (ТОО «ПК «Цементный завод Семей»), золы-уноса и доменного шлака представлен на рисунке 1.

На рисунке 2 (а–г) показаны объемные соотношения материалов для приготовления 1 кг раствора цементной матрицы с золой-уноса. Отмечено, объем золы-уноса почти в 3 раза превышает объем цемента, тогда как отношение массы золы-уноса к массе цемента равно 2,5.

Иллюстрация процедуры определения водоотделения цементного раствора показана на рисунке 3. За два часа отстаивания происходит оседание раствора и отделение воды на поверхности (см. рисунок 3 а), объем выделившейся воды регистрируется в двух параллельных для каждого состава (см. рисунок 3 б и 3 в). Предпочтительным является состав и тип цемента, приводящий к минимальному водоотделению.

Установлено, что водоотделение растворов с золой-уноса с одинаковыми соотношениями компонентов, в состав которых входил цемент типа «Super 500» (ТОО «ПК «Цементный завод Семей») меньше, чем водоотделение растворов с цементом типа «Extrema plus 550» производителя ТОО «JAMBYL CEMENT». Значения коэффициентов водоотделения растворов с доменным шлаком превышают допустимый предел водоотделения (<3%), согласно принятым требованиям.

На растворах с золой-уноса показано, что коэффициент водоотделения имеет меньшие значения при снижении количества воды в растворе, но в то же время слишком густой замес не позволит качественно смешать компоненты и получить однородную консистенцию раствора. Поэтому составы, в которых не было водоотделения, далее не рассматривались в качестве кандидатных. Минимально-допустимым соотношением воды к сухим компонентам принято $B / (Ц + ЗУ + Г)$ от 0,38. С уменьшением массы цемента и увеличением массы золы-уноса водоотделение снижается (см. рисунок 3 г). По результатам определения было выяснено, что минимальное водоотделение характерно для соотношения $(Ц / ЗУ) = (1 / 2,5)$.

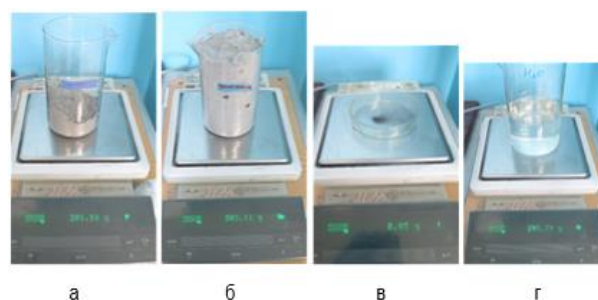


Рисунок 2. Пример объемного соотношения компонентов для изготовления 1 кг раствора цементной матрицы с золой-уноса: а – цемент, б – зола-уноса, в – графит, г – вода

Процесс определения вязкости раствора через растекаемость показан на рисунке 4. После встряхивания раствора на столике 30 раз, определяли величину растекаемости (см. рисунок 4 а и 4 б). Растекаемость растворов в состав которых входила зола-уноса и цемент типа «Super 500» (ТОО «ПК «Цементный завод Семей») меньше, чем с той же золой-уноса и цементом типа «Extrema plus 550» производителя ТОО «JAMBYL CEMENT».

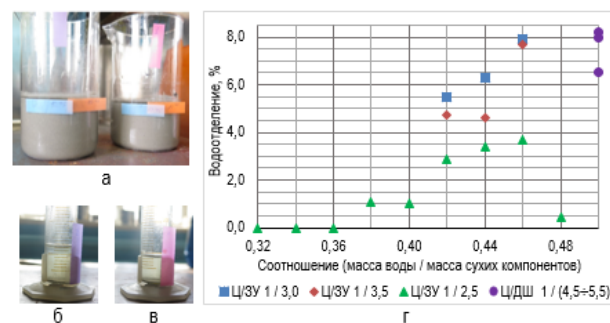


Рисунок 3. Определение водоотделения: а – оседание раствора и водоотделение в процессе отстаивания в течение 2-х часов, б и в – параллельное определение объема отделившейся воды, г – сравнение водоотделения растворов с разным количеством золы-уноса и цемента «Super 500», и растворов с доменным шлаком

Консистенция растворов с доменным шлаком с содержанием воды ($50 \div 60$) масс. % по отношению к сухим компонентам оказалась очень жидкой. Растекаемость конуса превысила 300 мм. Эти составы считали неудовлетворительной густоты. С уменьшением количества воды, как для составов с доменным шлаком, так и с золой-уноса, растекаемость уменьшается (см. рисунок 4 в). Рекомендуемое количество воды по отношению к количеству сухих компонентов для получения удовлетворительной растекаемости ($0,40 \div 0,46$).

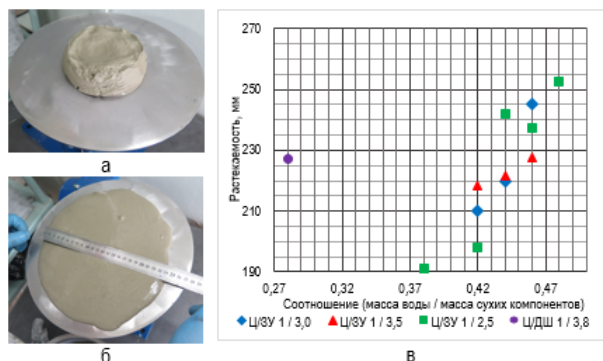


Рисунок 4. Определение вязкости раствора через растекаемость: а – раствор с доменным шлаком на столике до встряхивания, б – тот же раствор с доменным шлаком после встряхивания на столике 30 раз, в – обобщение результатов определения растекаемости

Время схватывания определяет возможную длительность смешивания компонентов цементного раствора. Время начала схватывания для составов с золой-уноса составило не менее 6 часов. Это даст возможность осуществлять смешивание в несколько подходов и позволит создать условия для достижения гомогенности раствора.

Визуальное обследование образцов на основе цемента «Super 500» не выявило каких-либо повреждений поверхности или искривлений, а также увеличения объема образцов в результате кипячения (см. рисунок 5 а). Образцы на основе цемента «Extrema plus 550» не все прошли испытание: у некоторых был обнаружен сколы на поверхности, образцы двух составов разрушились еще до кипячения (рисунок 5 б).

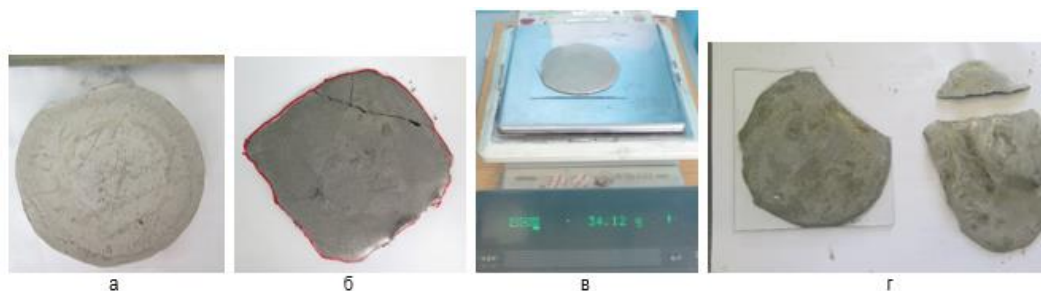


Рисунок 5. Определение постоянства изменения объема: а – образец с золой-уноса и цементом «Super 500» после испытаний; б – образец с золой-уноса и цементом «Extrema plus 550» разрушился до кипячения; в – образец с доменным шлаком и цементом «Super 500», масса образца меньше установленной стандартом, г – образцы с доменным шлаком разрушились до кипячения

Образцы цементного раствора на основе доменного шлака имели слишком жидкую консистенцию. В связи с чем затруднение вызвали как формирование образцов нужной массы и геометрических размеров, так и работа с ними. В связи с тем, что раствор растекался по поверхности пластины, при изготовлении образцов выдерживался только диаметр согласно стандарту (рисунок 5 в).

Для определения прочности были изготовлены образцы размером $100 \times 100 \times 100$ мм. Иллюстрация цементного раствора в форме и внешнего вида образца после распалубливания представлены на рисунке 6 (а–б).

Результаты определения прочности на сжатие образцов разных составов в возрасте от 3 до 56 суток представлены на рисунке 7.

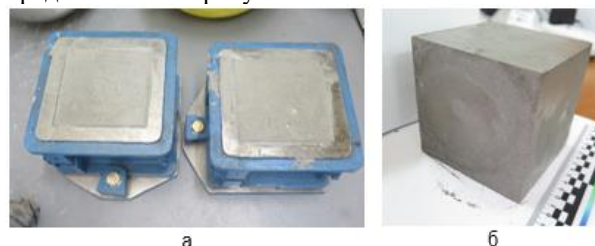


Рисунок 6. Цементный раствор в форме сразу после изготовления (а) и образец цементной матрицы после распалубливания (48 часов твердения) (б)

Образцы всех исследованных составов имели значения прочности на сжатие более 10 МПа в возрасте 28 суток. Максимальная прочность в образцах с золой-уноса характерна для образцов, содержащих в составе больше цемента (соотношение Ц / ЗУ = 1 / 1,77 и В / (Ц+ЗУ+Г) = 0,42).

Пористость образцов определяли визуально. Иллюстрация структуры образцов с разным содержанием воды приведена на рисунке 8. По внешнему виду образцов установлено, что с увеличением количества воды в составе образца его пористость уменьшается. Самые пористые образцы с соотношением (В / (Ц+ЗУ+Г) = 0,32 и 0,34. Рекомендуемое количество воды по отношению к количеству сухих компонентов для получения удовлетворительной структуры и минимальной пористости ($0,38 \div 0,48$).

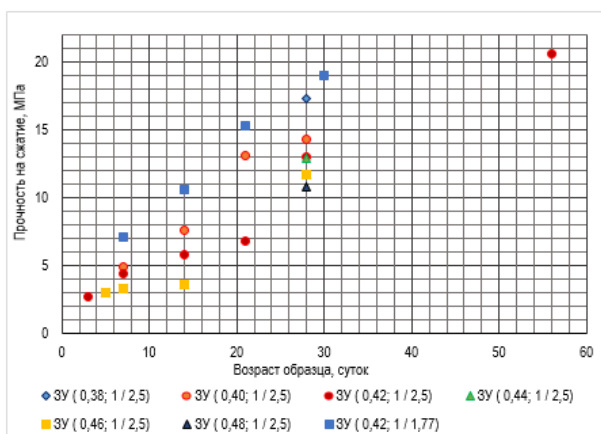


Рисунок 7. Сравнение прочности на сжатие образцов разных составов



Рисунок 8. Внешний вид образцов (возраст 28 суток): а) состав с 3У ($B / (Ц + 3У + Г) = 0,32$, $Ц/3У = 1 / 2,5$, цемент «Super 500»); б) состав с 3У ($B / (Ц + 3У + Г) = 0,38$, $Ц/3У = 1 / 2,5$, цемент «Super 500»); в) состав с 3У ($B / (Ц + 3У + Г) = 0,48$, $Ц/3У = 1 / 2,5$, цемент «Super 500»)

Однородность распределения частиц графита была определена с помощью исследования образцов методом оптической микроскопии. Изображения, полученные методом оптической микроскопии, приведены на рисунке 9.

В образцах на основе цемента без добавок, визуально наблюдали частицы светло-коричневого цвета, коричнево-красного, темно-серого цвета (рисунок 9 а). Распределение частиц равномерное. В образцах на основе цемента, с золой-уноса и графитом (рисунок 9 б), наблюдали присутствие темно-серых матовых (не блестящих) вкраплений. Вкрапления, вероятно, являются частицами золы-уноса. В образцах на основе цемента «Super 500», с доменным шлаком и графитом, морфология стеклоподобная – видны отсветы от глянцевой поверхности, цвет смеси преимущественно белый. Заметны вкрапления светло-коричневого и серого цвета в небольшом количестве (рисунок 9 в). На рисунке 9 г показано изображение образца на основе цемента «Super 500», с золой-уноса и графитом, масса которого соответствует его содержанию в матрице (1,2 масс. % от массы сыпучих компонентов матрицы). В образце наблюдается несколько глянцевых частиц черного цвета, размером около 100–150 мкм, которые, предположительно, и есть графит. На рисунке 9 д – структура образца на основе

цемента «Extrema plus 550» с золой уноса и графитом, в которой наблюдается присутствие темно-серых матовых вкраплений, соответствующих золе-уноса. В целом, светлые и светло-коричневые частицы, соответствующие цементу, имеют больший размер, чем на предыдущем рисунке. Это является отличительной чертой структуры цемента из г. Жамбыл.

На основании полученных изображений установлено, что распределение частиц графита на поверхности образцов достаточно однородное, что является показателем хорошего смешивания компонентов.

Исследование по каждому методу для каждого состава было проведено в среднем от 3 до 5 раз. Результаты определения водоотделения, постоянства сохранения объема, вязкости, и прочности имеют хорошую сходимость и повторяемость. Образцы составов, показавших высокую пористость, были изготовлены в объеме 1 л в единственном экземпляре, в малом объеме (для других испытаний), имели высокую пористость и низкую плотность.

Методики, используемые для определения водоотделения, вязкости, времени схватывания раствора, равномерности изменения объема, однородности и прочности образцов цементных матриц, основывались на методиках, применяемых к определению характеристик цементных растворов. Они показали свою состоятельность. Требования, применяемые для подбора состава матриц для иммобилизации отработавшего уран-графитового топлива реактора ИГР, оказались применимыми и достаточно конструктивными. Они могут быть рекомендованы для решения задач по подбору консистенции матриц.

На основании исследований водоотделения, вязкости (через растекаемость) раствора, постоянства сохранения объема, времени схватывания, прочности и однородности распределения графита в образцах были определены составы, с которыми продолжены научно-исследовательские работы.

На этапе лабораторных испытаний и зола-уноса, и доменный шлак, используемые в качестве специальных добавок, показали хорошие результаты. Работы по тестированию матриц на механическую прочность, стойкость к длительному пребыванию в воде, морозостойкость и скорость выщелачивания дальнейших продолжены с составами, в которых в качестве специальной добавки используется как зола-уноса, так и доменный шлак.

Составы с золой-уноса отличаются содержанием воды по отношению к сухим компонентам – от 0,38 до 0,48, а также соотношением массы цемента к массе специальной добавки – 1 / 2,5 и 1 / 1,77.

Состав с доменным шлаком определен однозначно: оптимальным соотношением массы воды к сухим компонентам оказалось 0,28, соотношение массы цемента к массе доменного шлака – 1 / 3,8. Этот состав позволяет получить образцы высокой прочности, минимальное водоотделение, удовлетворительную растекаемость и пр.

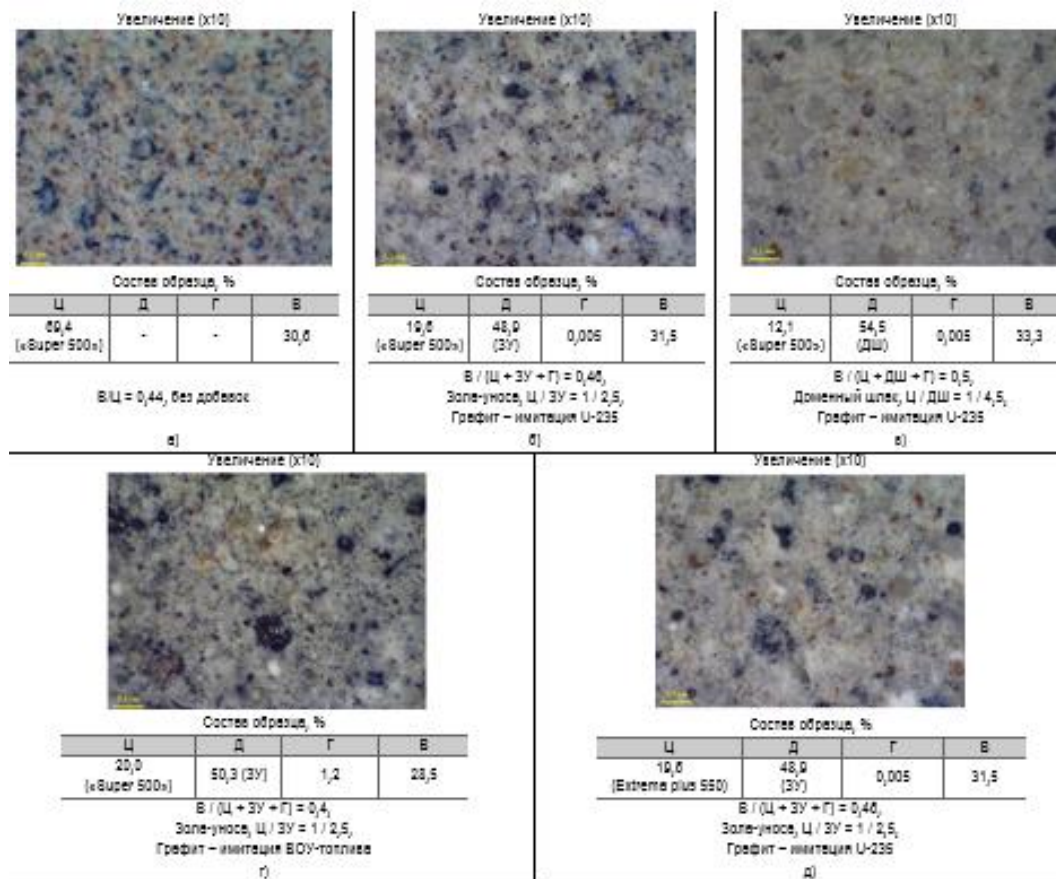


Рисунок 9. Структура матриц разных составов: а) цемент «Super 500» без добавок;
б) состав с ЗУ ($B / (C + 3У + Г) = 0,46$, $C/ЗУ = 1 / 2,5$, цемент «Super 500»);
в) состав с ДШ ($B / (C + ДШ + Г) = 0,5$, $C/ДШ = 1 / 4,5$, цемент «Super 500»);
г) состав с ЗУ ($B / (C + 3У + Г) = 0,40$, $C/ЗУ = 1 / 2,5$, цемент «Super 500»);
д) состав с ЗУ ($B / (C + 3У + Г) = 0,40$, $C/ЗУ = 1 / 2,5$, цемент «Extrema plus 550»)

Дальнейшие работы по тестированию матриц на механическую прочность, стойкость к длительному пребыванию в воде, морозостойкость и скорость выщелачивания в соответствии с требованиями [7] проводились с образцами, изготовленными по указанным соотношениям компонентов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате работ по подбору состава матрицы для иммобилизации облученного топлива реактора ИГР были установлены составы, удовлетворяющие требованиям по водоотделению, вязкости, времени схватывания раствора, равномерности изменения объема, однородности и прочности образцов.

Составы отличались соотношениями массы портландцемента к массе специальной добавки (зола-уноса и доменного шлака) и массы воды к сухим компонентам (к сухим компонентам относятся портландцемент, специальная добавка, имитатор топлива).

Составы с золой-уноса по критерию отношения массы портландцемента к массе золы-уноса составы разделены на две группы. Первая группа - с соотношением 1 / 2,5 включает в себя 6 составов с соотношением воды к сухим компонентам от 0,38 до 0,48.

Вторая группа – отношения массы портландцемента к массе золы-уноса равно 1/1,77. Соотношение массы воды к сухим компонентам во второй группе постоянно и равно 0,42.

Состав с доменным шлаком имеет определенные соотношения компонентов: отношение массы портландцемента к массе доменного шлака равно 1 / 3,8, соотношение массы воды к сухим компонентам равно 0,28.

Указанные составы были приняты для исследований показателей качества и сопоставления их с требованиями к цементированным радиоактивным отходам, полученным включением жидких радиоактивных отходов низкого и среднего уровней активности в матричные композиции на основе неорганических вяжущих веществ (портландцемент, шлакопортландцемент, металлургический шлак и др.).

Методики, используемые для определения характеристик цементных матриц, основывались на методиках, применяемых к определению характеристик цементных растворов. Они показали свою состоятельность. Требования по водоотделению, вязкости, времени схватывания раствора, равномерности изме-

нения объема, однородности и прочности образцов, применяемые для подбора состава матриц для иммобилизации отработавшего уран-графитового топлива реактора ИГР, оказались применимыми и достаточно конструктивными, а также могут быть рекомендованы для решения задач по подбору консистенции матриц для иммобилизации и других видов РАО.

Финансирование

Работа проводилась при финансовой поддержке Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан в рамках программы BR21882185 «Исследования в поддержку создания и безопасного функционирования атомной электростанции в Республике Казахстан».

ЛИТЕРАТУРА

1. Измерение мощности излучения от облученного ядерного топлива реактора ИГР и анализ радионуклидного состава ОЯТ: отчет о НИР / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; А.Г. Коровиков. – Курчатов, 2017. – № 36-100-05/375вн. от 01.03.17.
2. Nuclear Waste Forms [Text] / S.V. Stefanovsky, S.V. Yudinsev, R. Gier, G.R. Lump-kin // Energy, Waste and the Environment: A Geological Perspective. Geological Society, London. – 2004. – Special Publication. – V. 236. – P. 37–63.
3. An introduction to nuclear waste immobilization/ M.I. Ojovan, W.E. Lee.-Second Edition. Elsevier.
4. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами// IAEA-TCS-27, Вена, 2005.
5. Правила организации сбора, хранения и захоронения радиоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива, утв. приказом Министра энергетики Республики Казахстан от 8 февраля 2016 года № 39 (с изменениями от 21.09.2020 г.).
6. СТ РК 3723-2021. Отходы радиоактивные цементированные. Общие технические требования.
7. Строение и гидротермическая устойчивость самарий, гафний и урансодержащих стеклокристаллических материалов для иммобилизации твердых радиоактивных отходов/ Г.А. Малинина. – М., 2016.
8. Апсэ В.А., Шмелев А.Н. Ядерные технологии: учебное пособие. – М.: МИФИ, 2008. – 128 с.
9. Encapsulation of HEU / Graphite Particulate – Potential Formulations and Other Considerations, DEC_0988_A, S Farris, Sellafield LTD, 2020.
10. Туманов Ю.Н. Плазменные, высокочастотные, микроволновые и лазерные технологии в химико-металлургических процессах. – М.: Физматлит, 2010. – 968 с.
11. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами// IAEA-TCS-27, Вена, 2005.
12. Н.Р. Рахимова, Р.З. Рахимов, О.В. Стоянов, Композиционные вяжущие для иммобилизации токсичных и радиоактивных отходов / Вестник казанского технологического университета. – 2012. – Т. 16. – № 4. – С. 175–182.
13. Протокол совещания по вопросу «Требования нормативно-правовых актов Республики Казахстан, применимых к обращению с РАО, которые будут получены

- в результате разбавления и кондиционирования облученного высокообогащенного уран-графитового топлива исследовательского реактора ИГР» от 14-15 ноября 2019 г., КАЗНХ МЭ РК, г. Нур-султан, Казахстан
14. The behaviours of cementitious materials in long term storage and disposal of radioactive waste. Results of a coordinated research project. IAEA-TECDOC-1701. Vienna, 2013.
 15. ГОСТ 310.4-81. Цементы. Методы определения предела прочности при изгибе и сжатии. Cements. Methods of bending and compression strength determination.
 16. ГОСТ 310.6-85. Цементы. Методы определения водотделения. Cements. Method of water separation determination.
 17. ГОСТ 310.3-76. Цементы. Методы определения нормальной густоты, сроков схватывания и равномерности изменения объема. Cements. Methods for determination of standard consistency, times of setting and soundness.
 18. ГОСТ 10180-2012. Бетоны. Методы определения прочности по контрольным образцам. (EN 12390-1:2009, NEQ), (EN 12390-2:2009, NEQ), (EN 12390-3:2009, NEQ), (EN 12390-4:2009, NEQ), (EN 12390-5:2009, NEQ), (EN 12390-6:2009, NEQ). Concretes. Methods for strength determination using reference specimens.
 19. ГОСТ 22685-89. Формы для изготовления контрольных образцов бетона. Технические условия. Moulds for making control specimens of concrete. Specifications.
 20. ГОСТ 12730.1-2020. Бетоны. Методы определения плотности. Concretes. Methods of determination of density.

REFERENCES

1. Izmerenie moshchnosti izlucheniya ot obluchennogo yadernogo topliva reaktora IGR i analiz radionuklidnogo sostava OYaT: otchet o NIR / Filial IAE RGP NYaTs RK; A.G. Korovikov. – Kurchatov, 2017. – No. 36-100-05/375vn. ot 01.03.17.
2. Nuclear Waste Forms [Text] / S.V. Stefanovsky, S.V. Yudinsev, R. Gier, G.R. Lump-kin // Energy, Waste and the Environment: A Geological Perspective. Geological Society, London. – 2004. – Special Publication. – Vol. 236. – P. 37–63.
3. An introduction to nuclear waste immobilization/ M.I. Ojovan, W.E. Lee.-Second Edition. Elsevier.
4. Tekhnologicheskie i organizatsionnye aspekty obrashcheniya s radioaktivnymi otkhodami// IAEA-TCS-27, Vena, 2005.
5. Pravila organizatsii sbora, khraneniya i zakhoroneniya radioaktivnykh otkhodov i otrabotavshogo yadernogo topliva, utv. prikazom Ministra energetiki Respubliki Kazakhstan ot 8 fevralya 2016 goda No. 39 (s izmeneniyami ot 21.09.2020 g.).
6. ST RK 3723-2021. Otkhody radioaktivnye tsementirovannye. Obshchie tekhnicheskie trebovaniya.
7. Stroenie i gidroliticheskaya ustoychivost' samariy, gafniy i uransoderzhashchikh steklokristallicheskikh materialov dlya immobilizatsii tverdykh radioaktivnykh otkhodov/ G.A. Malinina. – Moscow, 2016.
8. Apse V.A., Shmelev A.N. Yadernye tekhnologii: uchebnoe posobie. – Moscow: MIFI, 2008. – 128 p.
9. Encapsulation of HEU / Graphite Particulate – Potential Formulations and Other Considerations, DEC_0988_A, S Farris, Sellafield LTD, 2020.

10. Tumanov Yu.N. Plazmennye, vysokochastotnye, mikrovolnovye i lazernye tekhnologii v khimiko-metallurgicheskikh protsessakh. – Moscow: Fizmatlit, 2010. – 968 p.
11. Tekhnologicheskie i organizatsionnye aspekty obrashcheniya s radioaktivnymi otkhodami// IAEA-TCS-27, Vena, 2005.
12. N.R. Rakhimova, R.Z. Rakhimov, O.V. Stoyanov Kompozitsionnye vyazhushchie dlya immobilizatsii toksichnykh i radioaktivnykh otkhodov / Vestnik kazanskogo tekhnologicheskogo universiteta. – 2013. – Vol. 16. – No. 4. – P. 175–182.
13. Protokol soveshchaniya po voprosu «Trebovaniya normativno-pravovykh aktov Respubliki Kazakhstan, primenimykh k obrashcheniyu s RAO, kotorye budut polucheny v rezul'tate razbavleniya i konditsionirovaniya obluchennogo vysokoobogashchennogo uran-grafitovogo topliva issledovatel'skogo reaktora IGR» ot 14-15 noyabrya 2019 g, KAENK ME RK, g. Nur-sultan, Kazakhstan.
14. The behaviours of cementitious materials in long term storage and disposal of radioactive waste. Results of a coordinated research project. IAEA-TECDOC-1701. Vienna, 2013.
15. GOST 310.4-81. Tsementy. Metody opredeleniya predela prochnosti pri izgibe i szhatii. Cements. Methods of bending and compression strength determination.
16. GOST 310.6-85. Tsementy. Metody opredeleniya vodootdeleniya. Cements. Method of water separation determination.
17. GOST 310.3-76. Tsementy. Metody opredeleniya normal'noy gustoty, srokov skhvatyvaniya i ravnomernosti izmeneniya ob'ema. Cements. Methods for determination of standard consistency, times of setting and soundness.
18. GOST 10180-2012. Betony. Metody opredeleniya prochnosti po kontrol'nyim obraztsam. (EN 12390-1:2009, NEQ), (EN 12390-2:2009, NEQ), (EN 12390-3:2009, NEQ), (EN 12390-4:2009, NEQ), (EN 12390-5:2009, NEQ), (EN 12390-6:2009, NEQ). Concretes. Methods for strength determination using reference specimens.
19. GOST 22685-89. Formy dlya izgotovleniya kontrol'nykh obraztsov betona. Tekhnicheskie usloviya. Moulds for making control specimens of concrete. Specifications
20. GOST 12730.1-2020. Betony. Metody opredeleniya plotnosti. Concretes. Methods of determination of density.

СӘУЛЕЛЕНГЕН УРАН-ГРАФИТ ОТЫНЫН ИММОБИЛИЗАЦИЯЛАУ ҮШІН ЦЕМЕНТ МАТРИЦАСЫНЫҢ ҚҰРАМЫН ТАҢДАУ ӘДІСТЕМЕСІ

О. С. Букина^{1,2*}, Ю. Ю. Бакланова¹, М. Н. Азбергенов¹, М. А. Кукса¹

¹⁾ *ҚР ҰАО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан*

²⁾ *Семей қаласының Шәкәрім атындағы университеті, Семей, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: bukina@nnc.kz

Импульсті графитті реактор әлемдегі бірегей ядролық қондырғы болып табылады. Зерттеу реакторының белсенді аймағы ²³⁵U изотопы бойынша 90 мас.% байытылған уран-графит блоктарын (твэлдерді) қалау болып табылады. Ойындар реакторын төмен байытылған отынға конверсиялау шеңберінде институт мамандары цемент матрицасындағы бірінші белсенді аймақты иммобилизациялау мүмкіндігін зерттеді.

Иммобилизация процесін зерттеу конверсия шарттарымен, халықаралық және ұлттық стандарттармен айқындалған уран-графит отыны матрицасына техникалық талаптарды қалыптастыруды, сондай-ақ матрица құрамын және компоненттерінің арақатынасын іріктеуді қамтыды.

Мақалада радиоактивті қалдықтарды және сәулеленген графитті иммобилизациялау саласындағы қазіргі заманғы жетістіктерді талдау, ИГР-дың жоғары байытылған отынын иммобилизациялау үшін матрицаның қолайлылық критерийлерін қалыптастыру, матрица қасиеттерінің белгіленген критерийлерге сәйкестігін айқындау әдістемесі нәтижелері келтіріледі.

ИГР реакторының сәулеленген отынын иммобилизациялауға арналған матрица құрамдары цемент ерітіндісінің су бөлу, тұтқырлығы, ұстау уақыты, көлемнің біркелкі өзгеруі, үлгілердің біртектілігі және беріктігі сияқты сипаттамаларына сүйене отырып, тәжірибелік жолмен таңдалды. Жоғарыда көрсетілген сипаттамаларды айқындау үшін цемент ерітінділерінің сипаттамаларын айқындауға қолданылатын әдістемелер қолданылды және жетілдірілді. Олар өздерінің қабілеттілігін көрсетті.

ИГР реакторының пайдаланылған уран-графит отынын иммобилизациялау үшін матрицалар құрамын іріктеу үшін қолданылатын талаптар қолдануға болатын және жеткілікті конструктивті болып шықты, сондай-ақ иммобилизациялау үшін матрицалар консистенциясын және РАҚ басқа түрлерін іріктеу жөніндегі міндеттерді шешу үшін ұсынылуы мүмкін.

Түйін сөздер: *зерттеу реакторы, ИГР реакторы, уран-графит отыны, иммобилизация, матрица, РАҚ.*

**METHODOLOGY OF SELECTING CEMENT MATRIX COMPOSITION
FOR IMMOBILIZATION OF IRRADIATED URANIUM-GRAPHITE FUEL**

O. S. Bukina^{1*}, Yu. Yu. Baklanova¹, M. N. Azbergenov¹, M. A. Kuksa¹

¹⁾ *Branch “Institute of Atomic Energy” RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan*

²⁾ *Shakarim University of Semey, Semey, Kazakhstan*

** E-mail for contacts: bukina@nnc.kz*

The Impulse Graphite Reactor (IGR) is a unique nuclear facility in the world. The core of the research reactor is a stack of uranium-graphite blocks (fuel elements) enriched to 90 wt. % in ²³⁵U isotope. As part of the project on conversion of the IGR reactor to low-enriched uranium fuel, the specialists of the Institute of Atomic Energy (IAE) studied the possibility of immobilizing the first core in a cement matrix.

Research into the immobilization process included both the formation of technical requirements for the uranium-graphite fuel matrix, determined by the conversion conditions, international and national standards, and the selection of the composition and ratios of the matrix components.

The paper presents the results of an analysis of modern achievements in the field of immobilization of radioactive waste and irradiated graphite, the formation of matrix acceptability criteria for the immobilization of highly enriched IGR fuel, and methods for determining whether the matrix properties correspond to the established criteria. The matrix compositions for immobilization of the irradiated fuel of the IGR reactor were selected experimentally, based on such characteristics of the cement slurry as bleed water, viscosity, setting time, uniformity of volume change, homogeneity and strength of the samples. To determine the above characteristics, the methods used to determine the characteristics of cement slurries were used and improved. They have proven their suitability.

The requirements used to select the composition of matrices for immobilization of spent uranium-graphite fuel of the IGR reactor turned out to be applicable and sufficiently constructive, and can also be recommended for solving issues of selecting the consistency of matrices for immobilization of other types of RW.

Keywords: *research reactor, IGR reactor, uranium-graphite fuel, immobilization, matrix, RW.*

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-54-59>

УДК 538.958

ИЗУЧЕНИЕ СТРУКТУРНОЙ РАЗУПОРЯДОЧЕННОСТИ В МОНОКРИСТАЛЛАХ CaF_2 ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ ИОНИЗИРУЮЩЕЙ РАДИАЦИИ

Р. Н. Асылбаев^{1*}, А. А. Кисабекова¹, Ф. У. Абуова², Б. К. Садуова², Г. М. Баубекова²

¹⁾ Павлодарский педагогический университет имени Э. Марғұлан, Павлодар, Қазақстан

²⁾ Евразийский национальный университет имени Л.Н. Гумилева, Астана, Қазақстан

* E-mail для контактов: ruslanassylbay@yandex.kz

В статье представлены результаты исследования процессов радиационного дефектообразования в монокристаллах фторида кальция под воздействием облучения рентгеновскими лучами, протонами и быстрыми тяжелыми ионами Xe^{132} и Bi^{209} . Основным методом исследования является абсорбционная спектроскопия. В спектрах оптического поглощения облученных разными видами ионизирующей радиации образцов CaF_2 регистрируются широкие интенсивные полосы поглощения, связанные с электронными и дырочными центрами окраски и их агрегатами. Анализ спектров оптического поглощения произведен в координатах Тауца и Урбаха. Выявлено в количественном плане влияние облучения быстрыми тяжелыми ионами на край фундаментального поглощения и на разупорядочение в анионной подрешетке кристалла CaF_2 . Обсуждена природа радиационно-индуцированного оптического поглощения в области 9,8 эВ, индуцируемого облучением ионами Xe^{132} и Bi^{209} .

Ключевые слова: фторид кальция, радиационные дефекты, абсорбционная спектроскопия, облучение быстрыми тяжелыми ионами, облучение рентгеновскими лучами, облучение протонами, метод Тауца, энергия Урбаха.

ВВЕДЕНИЕ

С середины прошлого века растет интерес к исследованию радиационных эффектов в материалах, вызванный как их потенциальным применением в современных технологиях, так и необходимостью понимания фундаментальных процессов взаимодействия излучения с материалами. Одним из перспективных объектов, привлекающих внимание исследователей, является монокристалл фторида кальция (CaF_2), который обладает хорошими оптическими и структурными свойствами, делающими его важным объектом для изучения радиационно-индуцированных изменений в материалах [1].

Целью данной работы является изучение эффектов, вызванных облучением монокристаллов CaF_2 быстрыми тяжелыми ионами, протонами и рентгеновскими лучами. Облучение материалов ионизирующим излучением может приводить к изменениям в их электронной структуре, что в свою очередь оказывает влияние на их оптические свойства. В частности, в данной работе осуществляется сравнительный анализ влияния различных типов облучений на спектральные характеристики монокристаллов CaF_2 с использованием методов абсорбционной спектроскопии.

Разные типы ионизационного излучения по-разному влияют на оптические и структурные свойства CaF_2 . Облучение рентгеновскими лучами не приводит к созданию значимых структурных дефектов в CaF_2 при комнатной температуре, а производит процессы перезарядки существующих примесных и дефектных центров, в результате образуются фотохромные центры окраски [2].

Изучению радиационных дефектов под воздействием высокоэнергетических ионов посвящен ряд работ [3–6]. При облучении ионами во многих широкоцелевых диэлектрических материалах образование радиационных дефектов происходит не только за счет прямого столкновения бомбардирующего иона с ионами мишени и их последующего смещения с регулярных позиций, но также посредством механизма распада электронных возбуждений (ЭВ) – электронно-дырочных пар (e–h пар) и экситонов. Механизм распада ЭВ (неударный механизм) был подробно изучен для щелочно-галогидных кристаллов (ЩГК) [7–8]. Ионное облучение создает высокую плотность ЭВ внутри цилиндрического ионного трека. Так как энергия создания анионных френкелевских пар в CaF_2 (2,5–3 эВ) гораздо ниже энергии образования анионного экситона и энергии запрещенной зоны, механизм распада ЭВ и является основным механизмом создания радиационных дефектов в данном материале [1]. Поток ускоренных протонов также создает в CaF_2 большое количество ЭВ – экситонов и e–h пар, распад которых приводит к созданию френкелевских дефектов, преимущественно в анионной подрешетке.

Одним из ключевых аспектов данного исследования является анализ спектров поглощения в координатах Тауца [9], что позволяет оценить смещение края фундаментального поглощения, вызванного радиационными дефектами. Такой подход дает возможность не только качественно, но и количественно оценить изменения в электронной структуре монокристаллов. Дополнительно, в работе проводится оценка энергии Урбаха [10] для каждого вида облучения, что предоставляет информацию об уширении

края поглощения и увеличении динамической разупорядоченности в структуре кристалла.

Таким образом, настоящее исследование направлено на глубокое качественное и количественное понимание радиационно-индуцированных процессов в монокристаллах CaF₂, что может способствовать разработке новых материалов с заранее заданными свойствами для использования в оптоэлектронике, ядерной физике и других областях науки и техники. Данное исследование является логическим продолжением работ [3, 4] с применением методов вычисления оптических характеристик облученных CaF₂.

МЕТОДЫ И МАТЕРИАЛЫ

В рамках данного исследования были изучены беспримесные монокристаллы CaF₂, выращенные методом Бриджмана-Стокбаргера в Государственном оптическом институте имени С.И. Вавилова. Наибольшая концентрация «нежелательных» примесей составляет около 0,01 моль % и принадлежит примесям трехвалентного иттрия. Полученные образцы имеют форму прямоугольника, сколотые вдоль плоскости (111) и размеры 5×5 мм и толщину от 0,8 до 1 мм.

Облучение ионами Xe¹³² производилось на циклотроне DC-60 в г. Астана (Казахстан) на специализированном канале для исследований в области физики твердого тела. Облучение ионами Bi²⁰⁹ производилось на линейном ускорителе UNILAC научного комплекса GSI (Дармштадт, Германия). Облучение рентгеновскими лучами проводилось в лаборатории Тартуского университета (Эстония) на рентгеновской установке при параметрах 50 кВ и 15 мА с использованием вольфрамовой трубки. Получаемая образцом доза облучения в течение 1 часа приблизительно равна 100 Гр. Облучение протонами проводилось в KIIIsA 500 kV implanter (Хельсинки, Финляндия) с энергией 100 кэВ и флюенсом 10¹⁷ р/см². Параметры облучения представлены в таблице 1.

Таблица 1. Параметры облучения

Вид облучения	E _{част.} , МэВ	Средний пробег, мкм	Флюенс, частиц/см ²	Доза радиации, Гр	Радиационные повреждения, dpa
Xe ¹³²	231	18	5·10 ¹²	3,2·10 ⁷	0,0027
Bi ²⁰⁹	2383	90	3·10 ¹¹	4·10 ⁶	0,00008
p ¹	0,1	0,82	10 ¹⁷	6,1·10 ⁹	0,2
X	–	–	–	100	–

Для измерения оптического поглощения в ультрафиолетовой (УФ), видимой и ближней инфракрасной (ИК) областях использовался двухлучевой оптический спектрофотометр Jasco V-660, способный фиксировать спектры на длинах волн от 190 до 900 нм и измерять оптическую плотность до значения 4. Спектры в области поглощения вакуумного ультрафиолета (ВУФ) измерялись при помощи вакуумного дифракционного монохроматора ВМР-2. Источником света

в данной установке является газоразрядная лампа, работающая в атмосфере молекулярного водорода.

Все облучения и измерения проводились при комнатной температуре в нормальных условиях.

Анализ спектров оптического поглощения произведен в координатах Тауца и Урбаха. С подробным анализом данных методов можно ознакомиться в оригинальных статьях [9, 10] или в статье [11]. Метод Тауца позволяет по спектру поглощения определить ширину запрещенной зоны материала. Так как в энергетической структуре CaF₂ реализуются прямые разрешенные переходы [12], то уравнение Тауца можно применить в следующем виде:

$$(\alpha \cdot hv)^2 = K \cdot (hv - E_g),$$

где α – коэффициент поглощения, hv – энергия фотона, E_g – ширина запрещенной зоны, K – постоянная, равная единице для многих материалов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Как известно, ионизирующее облучение создает в твердых телах радиационные дефекты, которые могут дать рост оптического поглощения в спектральном диапазоне, где необлученный материал демонстрирует прозрачность. Спектры радиационно-индуцированного оптического поглощения монокристаллов CaF₂, облученных разными видами радиации в диапазоне энергий от 1,4 до 10,2 эВ представлены на рисунке 1.

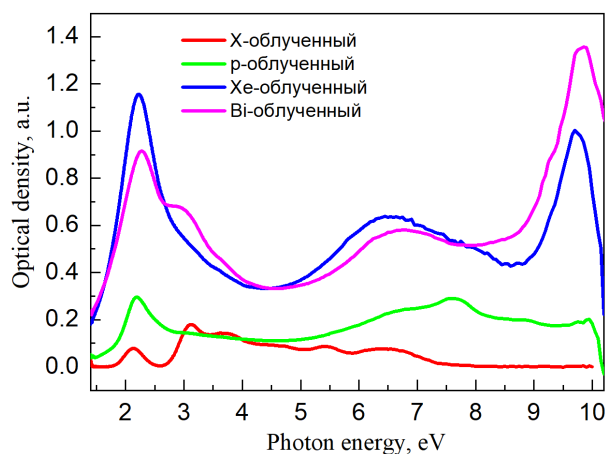


Рисунок 1. Спектры радиационно-индуцированного оптического поглощения, измеренные для монокристаллов CaF₂, облученных при комнатной температуре рентгеновскими лучами (X-облученный), протонами (p-облученный), ионами Xe¹³² (Xe-облученный) или Bi²⁰⁹ (Bi-облученный). Все спектры измерены при комнатной температуре, поглощение исходного необлученного образца вычтено [4]

В видимой области спектра мы можем видеть интенсивные полосы поглощения для всех видов облучения. Известно, что в монокристаллах CaF₂, облученных ионами Xe¹³² или Bi²⁰⁹ и протонами, создаются структурные радиационные дефекты – электронные и дырочные центры, а также их агрегаты. В видимой области спектра около 2,2 эВ рост оптической

го поглощения дают электронные центры окраски F-типа, их агрегаты, а также коллоиды Ca. Для образца, облученного рентгеновскими лучами, в видимой области спектра зарегистрированы полосы поглощения, изученные во многих работах и связанные с фотохромными центрами (ФЦ). Наличие в кристалле некоторой концентрации примеси иттрия Y^{3+} , создает условия для образования фотохромных центров, в состав которых входят трехвалентный Y^{3+} , анионная вакансия и один (ФЦ⁺) или два электрона (ФЦ) [13]. При облучении рентгеновскими лучами происходит перезарядка данных центров и наведение оптического поглощения.

В облученных ионами Xe^{132} и Bi^{209} образцах CaF_2 в спектральной области УФ-ВУФ (4–10 эВ) мы можем наблюдать структурные интенсивные полосы оптического поглощения. Полоса при 6,5 эВ по литературным данным связана с трехгалогидными квази-молекулами F_3^- , представляющими собой линейную структуру из трех атомов фтора, расположенных вдоль направления $\langle 111 \rangle$ [16].

Наибольший интерес представляет полоса поглощения при 9,8 эВ, которая индуцируется только при облучении высокоэнергетическими ионами Xe^{132} и Bi^{209} , тогда как при облучении протонами и рентгеновскими лучами данная полоса не регистрируется.

На рисунке 2 представлены спектры оптического поглощения в интервале 4,5–10,3 эВ для монокристаллов CaF_2 , облученных различными видами радиации. Также на рисунке представлен спектр необлученного образца. В отличие от рисунка 1, здесь спектры представлены без вычитания спектра необлученного кристалла.

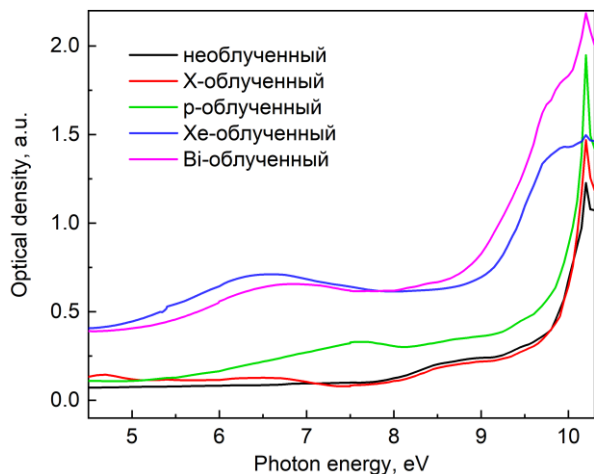


Рисунок 2. Спектры оптического поглощения монокристаллов CaF_2 , облученных при комнатной температуре рентгеновскими лучами (X-облученный), протонами (p-облученный), ионами Xe^{132} (Xe-облученный) или Bi^{209} (Bi-облученный), а также необлученного образца CaF_2

Как мы видим из рисунка 2, спектр поглощения необлученного образца демонстрирует достаточную прозрачность в диапазоне от 4,5 до 9,5 эВ. Далее с повышением энергии фотона начинается фундамен-

тальное поглощение кристалла. Согласно литературным данным, данная область соответствует экситонному поглощению [1]. Практически идентичное поведение демонстрирует образец CaF_2 , облученный рентгеновскими лучами. Очевидно, что облучение рентгеновскими лучами не создает каких-либо структурных дефектов в данном материале, ответственных за поглощение в УФ-ВУФ области. Заметно нарастание оптического поглощения в изучаемой области в образце, облученном протонами. Мы можем наблюдать полосу около 7,6 эВ. Наиболее заметные полосы поглощения наблюдаются при ионном облучении. Для Xe-облученного образца заметна полоса поглощения около 6,5 эВ, тогда как для Bi-облученного образца мы видим смещение данной полосы в высокоэнергетическую область спектра. Для образцов, облученных ионами Xe и Bi, заметно значительное смещение края фундаментального поглощения в длинноволновую сторону спектра. Как показано на рисунке 1, после вычитания спектра поглощения, необлученного кристалла, в данной области мы можем обнаружить заметную полосу поглощения около 9,8 эВ.

На рисунке 3 спектры оптического поглощения облученных разными видами радиационного излучения образцов CaF_2 представлены в координатах Тауца. Точки пересечения с осью энергии фотона линий экстраполяции линейных областей спектров определяет энергию края фундаментального поглощения.

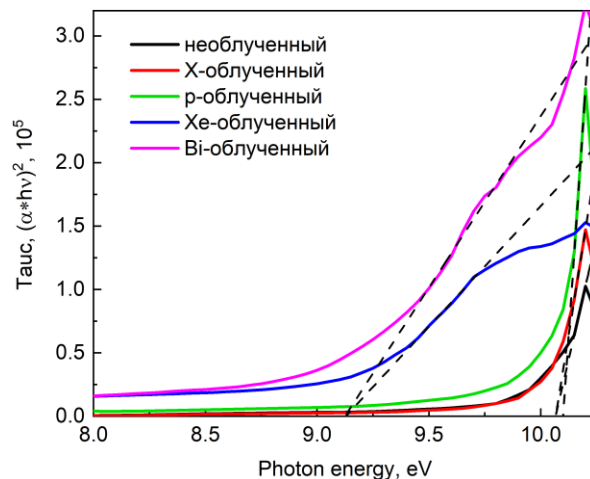


Рисунок 3. Спектры оптического поглощения в координатах Тауца монокристаллов CaF_2 , облученных при комнатной температуре рентгеновскими лучами (X-облученный), протонами (p-облученный), ионами Xe^{132} (Xe-облученный) или Bi^{209} (Bi-облученный), а также необлученного образца CaF_2

На рисунке 4 спектры оптического поглощения монокристаллов CaF_2 , облученных различными видами радиации, представлены в логарифмических координатах (координатах Урбаха). Обратная величина тангенса угла наклона экстраполирующей прямой линейной области спектра близкой к фундаментальному поглощению дает значение энергии Урбаха.

Таблица 2. Энергия фундаментального поглощения и энергия Урбаха для монокристаллов CaF₂

Параметр	Необлученный CaF ₂	Рентгеновское облучение	Облучение протонами	Облучение Xe ¹³²	Облучение Bi ²⁰⁹
Энергия фундаментального поглощения, эВ	10,09	10,1	10,1	9,13	9,13
Энергия Урбаха, эВ	0,38	0,38	0,38	0,90	1,04

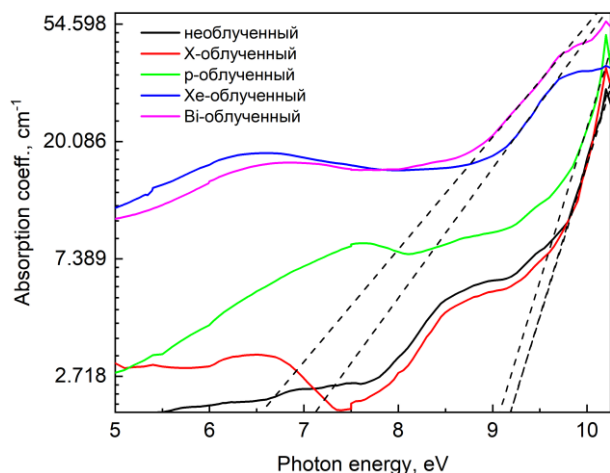


Рисунок 4. Спектры оптического поглощения в координатах Урбаха (в логарифмических координатах) монокристаллов CaF₂, облученных при комнатной температуре рентгеновскими лучами (Х-облученный), протонами (р-облученный), ионами Xe¹³² (Xe-облученный) или Bi²⁰⁹ (Bi-облученный), а также необлученного образца CaF₂

В таблице 2 представлены энергия края фундаментального поглощения и энергия Урбаха для необлученного и облученных разными видами радиации образцов CaF₂.

Из литературных данных ширина запрещенной зоны CaF₂ равна 12,1 эВ, тогда как первый экситонный пик около 11,2 эВ [12]. Как видно из таблицы 2, край фундаментального поглощения для всех образцов находится ниже области поглощения анионного экситона. Для необлученного образца и образцов, облученных рентгеновскими лучами и протонами, край фундаментального поглощения имеет практически идентичные значения. Смещение данной энергии на 1 эВ в длинноволновую сторону спектра по отношению к экситонному поглощению свидетельствует о влиянии на данный параметр существующих в кристалле до облучения ростовых дефектов и примесей. Для образцов, облученных ионами Xe¹³² и Bi²⁰⁹, мы видим заметное смещение края фундаментального поглощения почти на 2 эВ по сравнению с первым экситонным пиком. Энергия Урбаха для необлученного, Х-облученного и р-облученного кристаллов демонстрирует идентичное значение 0,38 эВ, тогда как для Хе- и Bi-облученных образцов мы видим рост данного параметра (0,9 и 1,4 эВ, соответственно).

Таким образом, облучение тяжелыми ионами по сравнению с другими видами радиации, рассмотренными в данном исследовании, создают заметные в

количественном плане структурные повреждения в кристалле. Х- и р-облучения никак не влияют на положение края фундаментального поглощения и энергия Урбаха для них остается такой же как и для необлученного кристалла. Если сравнивать дозы облучения (таблица 1), то наибольшую дозу обеспечивает облучение протонами с энергией 100 кэВ и флюенсом 10¹⁷ см⁻². Хотя и у р-облучения доза радиации превышает на несколько порядков Хе- и Bi-облучения, разупорядочение в кристалле практически не создается. Одно из основных отличий облучения протонами от облучения тяжелыми ионами в том, что в последнем случае в цилиндрическом ионном треке создается высокая плотность ЭВ. Таким образом, можно сделать вывод, что динамическое разупорядочение в кристалле создаются внутри ионного трека.

В модели термического пика [14], сначала, энергия иона переносится электронной подсистеме, где рассеивается в большом объеме. Во втором этапе энергия переносится атомам решетки, внося вклад в локальный нагрев твердого тела. В зависимости от природы материала данный процесс является достаточно эффективным для локального повышения температуры выше температуры плавления. Быстрый спад температуры закаливает расплавленную фазу, создавая треки и поверхностные хиллоки [15, 16]. Установлено, что при повышении температуры процесс разупорядочения анионной подрешетки в кристаллах типа флюорита начинается за несколько сотен градусов до точки плавления [17]. Данный процесс связан с образованием кластеров, состоящих из междоузлий и вакансий фтора, а также окружающих их релаксированных анионов. Подобные кластеры образуются при высоких температурах и исчезают с понижением температуры. Как указано выше, внутри ионного трека создается область локального нагрева кристалла и создаются условия для образования подобных кластеров. При быстром охлаждении часть данных кластеров могут быть «заморожены» и оставаться стабильными даже при комнатной температуре [18]. В работе [4] показано, что данная модель может быть применена и к ионному облучению CaF₂ и полоса при 9,8 эВ (рисунок 1), а также соответствующее смещение края фундаментального поглощения на 2 эВ в длинноволновую сторону спектра предположительно связаны со сложными анионными кластерами. За само поглощение при 9,8 эВ могут отвечать электронные возбуждения (экситоны) около этих анионных кластеров.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данном исследовании были изучены процессы радиационного дефектообразования в монокристаллах фторида кальция, облученных рентгеновскими лучами, протонами, ионами Xe¹³² и Bi²⁰⁹. Изученные ранее спектры радиационно-индуцированного оптического поглощения кристаллов CaF₂ [3, 4] были представлены в координатах Тауца и Урбаха (логарифмические координаты). Для каждого вида облучения были определены изменения в оптических свойствах материала. Так, вычислены энергия края фундаментального поглощения и энергия Урбаха. Оказалось, что облучение рентгеновскими лучами и протонами никак не воздействуют на оптические свойства в ВУФ области вблизи фундаментального поглощения. В то же время, облучение тяжелыми ионами Xe¹³² и Bi²⁰⁹ создает значительные структурные повреждения в кристалле, что отражается на его оптических свойствах. Заметное смещение края фундаментального поглощения и увеличение энергии Урбаха свидетельствует об отличиях облучения тяжелыми ионами от облучения X-лучами и протонами. При облучении тяжелыми ионами внутри цилиндрического трека иона в анионной подрешетке кристалла создаются анионные кластеры, которые предположительно и ответственны за поглощение при 9,8 эВ.

Благодарность

Работа выполнена в рамках грантового проекта АР14870572, Министерства науки и высшего образования РК.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

- Hayes W. Crystals with the fluorite structure – electronic, vibrational and defect properties. London: Clarendon Press, 1974. 448 p.
- Bugaenko T.Yu., Radzhabov E.A., Ivashechkin V.F. Thermal decay of photochromic color centers in CaF₂, SrF₂, and BaF₂ crystals doped by La and Y impurities // *Physics of the Solid State*. – 2008. – Vol. 50, No. 9. – P. 1671–1673. <https://doi.org/10.1134/S1063783408090151>
- Assylbayev R. et al. Radiation damage caused by swift heavy ions in CaF₂ single crystals // *Radiat Meas.* Pergamon. – 2016. – Vol. 90. – P. 18–22. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.12.034>
- Assylbayev R. et al. Structural defects caused by swift ions in fluorite single crystals // *Opt. Mater. (Amst)*. North-Holland. – 2018. – Vol. 75. – P. 196–203. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2017.10.026>
- Boccanfuso M. et al. Study of the damage produced in CaF₂ by swift heavy ion irradiation // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. – 2002. – Vol. 191, No. 1–4. – P. 301–305. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(02\)00580-3](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(02)00580-3)
- Davidson A.T. et al. The colouration of CaF₂ crystals by keV and GeV ions // *Radiation Effects and Defects in Solids*. – 2002. – Vol. 157, No. 6–12. – P. 637–641. <https://doi.org/10.1080/10420150215811>
- Lushchik C.B., Vitol I.K., Élango M.A. Decay of electronic excitations into radiation defects in ionic crystals // *Soviet Physics Uspekhi*. – 1977. – Vol. 20, No. 6. – P. 489–505. <https://iopscience.iop.org/article/10.1070/PU1977v020n06ABEH005405/meta>
- Lushchik A. et al. Excitonic and electron–hole mechanisms of the creation of Frenkel defect in alkali halides // *Nuclear Instrumental Methods Phys Res B*. – 2000. – Vol. 166–167. – P. 529–537. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00788-0](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00788-0)
- Tauc J. *Amorphous and Liquid Semiconductors*. 1st ed. / ed. Tauc J. London: Plenum Publishing Company Ltd. – 1974. – 460 p.
- Urbach F. The Long-Wavelength Edge of Photographic Sensitivity and of the Electronic Absorption of Solids // *Physical Review*. – 1953. – Vol. 92, No. 5. – P. 1324–1324. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.92.1324>
- Akilbekov A. et al. Unveiling the Structural and Optical Properties of MgAl₂O₄ Single Crystals Irradiated by Swift Heavy Ions // *Materials*. – 2024. – Vol. 17, No. 2. – P. 344. <https://doi.org/10.3390/ma17020344>
- Rubloff G.W. Far-Ultraviolet Reflectance Spectra and the Electronic Structure of Ionic Crystals // *Phys Rev B*. American Physical Society. – 1972. – Vol. 5, No. 2. – P. 662. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.5.662>
- Egranov A. V. et al. Effect of cationic impurities on the formation of radiation defects in alkaline earth fluorides // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. – 2015. – Vol. 79, No. 2. – P. 280–284. <https://doi.org/10.3103/S1062873815020082>
- Toulemonde M., Dufour C., Paumier E. Transient thermal process after a high-energy heavy-ion irradiation of amorphous metals and semiconductors // *Phys Rev B*. – 1992. – Vol. 46, No. 22. – P. 14362–14369. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.46.14362>
- Aumayr F. et al. Single ion induced surface nanostructures: a comparison between slow highly charged and swift heavy ions // *Journal of Physics: Condensed Matter*. – 2011. – Vol. 23, No. 39. – P. 393001. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-8984/23/39/393001/meta>
- El-Said A.S. Heavy ion-induced damage in ionic fluoride single crystals: Doctor of Natural Science. – Heidelberg: Ruperto-Carola University. – 2004. – 116 p.
- Hutchings M.T. et al. Investigation of thermally induced anion disorder in fluorites using neutron scattering techniques // *Journal of Physics C: Solid State Physics*. – 1984. – Vol. 17, No. 22. – P. 3903–3940. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0022-3719/17/22/011/meta>
- Ryskin A.I. et al. Stabilization of high-temperature disorder of fluorine sublattice by quenching in calcium fluoride crystals // *J. Fluor Chem*. – 2017. – Vol. 200. – P. 109–114. <https://doi.org/10.1016/j.jfluchem.2017.06.013>

ИОНДАУШЫ СӘУЛЕЛЕНУДІҢ ӘСЕРІНЕН CaF₂ МОНОКРИСТАЛДАРЫНДАҒЫ
ҚҰРЫЛЫМДЫҚ БҰЗЫЛЫСТАРДЫ ЗЕРТТЕУ

Р. Н. Асылбаев^{1*}, А. А. Кисабекова¹, Ф. У. Абуова², Б. К. Садуова², Г. М. Баубекова²

¹ *Ә. Марғұлан атындағы Павлодар педагогикалық университеті, Павлодар, Қазақстан*

² *Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: ruslanassylbay@yandex.kz

Бұл мақалада рентген сәулелерімен, протондармен және Хе¹³² және Вi²⁰⁹ жылдам ауыр иондарымен сәулелену әсерінен кальций фториді монокристалдарында радиациялық ақау түзілу процестерін зерттеу нәтижелері келтірілген. Негізгі зерттеу әдісі – абсорбциялық спектроскопия. Өртүрлі иондаушы сәулелену түрлерімен сәулеленген CaF₂ үлгілерінің оптикалық абсорбциялық спектрлерінде электронды және кемтіктік түс орталықтарымен және олардың агрегаттарымен байланысты кең интенсивті жұтылу жолақтары тіркелген. Оптикалық абсорбциялық спектрлер Тауц және Урбах координаттарында талданған. Жылдам ауыр иондармен сәулеленудің негізгі абсорбция жиегіне және CaF₂ кристалының аниондық торшасының бұзылуына әсері сандық түрде анықталды. Хе¹³² және Вi²⁰⁹ иондарымен сәулелену арқылы индукцияланған 9,8 эВ аймағындағы радиацияның әсерінен болатын оптикалық жұтудың табиғаты талқыланады.

Түйін сөздер: кальций фториді, радиациялық ақаулар, абсорбциялық спектроскопия, жылдам ауыр иондармен сәулелену, рентгендік сәулелену, протондық сәулелену, Тауц әдісі, Урбах энергиясы.

STUDY OF STRUCTURAL DISORDER IN CaF₂ SINGLE CRYSTALS
UNDER THE INFLUENCE OF IONIZING RADIATION

Р. Н. Асылбаев^{1*}, А. А. Кисабекова¹, Ф. У. Абуова², Б. К. Садуова², Г. М. Баубекова²

¹⁾ *Margulan Pavlodar Pedagogical University, Pavlodar, Kazakhstan*

²⁾ *L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan*

* E-mail for contacts: ruslanassylbay@yandex.kz

This paper presents the results of a study of radiation defect creation processes in Calcium Fluoride single crystals irradiated with X-rays, protons, and fast heavy ions of Хе¹³² and Вi²⁰⁹. The main method of the study is absorption spectroscopy. In the optical absorption spectra of CaF₂ samples irradiated with different types of ionizing radiation, broad intense absorption bands associated with electron and hole color centers and their aggregates are recorded. The analysis of the optical absorption spectra is performed in the Tauc and Urbach coordinates. The effect of fast heavy ion irradiation on the fundamental absorption edge and on disordering in the anion sublattice of the CaF₂ crystal is quantitatively revealed. The nature of the radiation-induced optical absorption in the 9.8 eV region induced by irradiation with Хе¹³² and Вi²⁰⁹ ions is discussed.

Keywords: calcium fluoride, radiation defects, absorption spectroscopy, fast heavy ion irradiation, X-ray irradiation, proton irradiation, Tauc method, Urbach energy.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-60-68>

УДК 539.21:539.12.04:669.3

ВЛИЯНИЕ МАРТЕНСИТНОГО ПРЕВРАЩЕНИЯ, ИНДУЦИРОВАННОГО ДЕФОРМАЦИЕЙ, НА МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА АУСТЕНИТНЫХ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ СТАЛЕЙ, ОБЛУЧЕННЫХ НЕЙТРОНАМИ В РЕАКТОРЕ ВВР-К

А. В. Коломийцева, Д. А. Мережко*, М. С. Мережко

РГП «Институт ядерной физики» МЭ РК, Алматы, Казахстан

** E-mail для контактов: nallika@gmail.com*

В работе изучены особенности мартенситного превращения в процессе пластической деформации (одноосное растяжение и сжатие) аустенитных сталей 12X18H10T и AISI304, облученных тепловыми нейтронами до флюенса тепловых нейтронов $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² ($2,2 \cdot 10^{20}$ н/см² при $E > 0,1$ МэВ). Рассчитаны значения никелевого эквивалента и энергии дефекта упаковки для сталей 12X18H10T и AISI304. Установлено, что сталь AISI304 более склонна к мартенситному превращению. Определены механические характеристики исследуемых сталей при одноосном растяжении. Показано, что при аналогичных характеристиках прочности, пластичность облученной стали AISI304 в два раза выше, чем стали 12X18H10T. Данный факт обусловленным более интенсивным протеканием мартенситного превращения в процессе пластической деформации стали AISI304.

Ключевые слова: аустенитная сталь, конструкционные материалы, мартенситное превращение, облучение, нейтроны.

ВВЕДЕНИЕ

В основе изготовления конструкционных деталей для активной зоны ядерных реакторов лежит оптимальный подбор материалов, в том числе с учетом их механических свойств [1–2]. Исходя из оптимального соотношения прочности и пластичности в достаточно широком температурном диапазоне, аустенитные нержавеющие стали представляют собой наиболее перспективные материалы для внутрикорпусных устройств легководных реакторов и реакторов на быстрых нейтронах [3–5]. Однако, физические и механические свойства материалов в значительной степени изменяются в процессе эксплуатации изделия под влиянием условий агрессивной среды, таких как высокие температуры, механические напряжения, радиационное воздействие. С учетом отдельных исключений [6–8], в общем случае, нейтронное облучение способствует деградации свойств материалов, например, снижению пластичности вследствие преждевременной локализации [9–12], структурно-фазовой нестабильности [13–16], снижению сопротивления материала к общей и язвенной коррозии [17–18], а также проявлению прочих последствий, которые значительно снижают ресурс работы ядерных энергетических установок.

Пластичность аустенитных метастабильных сталей во многом определяется протекающим в них в процессе деформации мартенситным $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращением, которое заключается в образовании в парамагнитной аустенитной матрице ферромагнитных пластин α' -мартенсита. В общем случае зародыши новой фазы образуются на пересечении полос сдвига, который могут представлять собой дефекты упаковки, двойники или ϵ -фазу [19]. При том, что прочность мартенситной α' -фазы всего на 20–25% выше, она тем не менее значительно упрочняет материал, по-види-

мому за счет мелкозернистой структуры [20]. Своевременное упрочнение способствует увеличению стойкости материала к локализации деформации и, соответственно, его пластичности [21–23].

Влияние $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращения на механические свойства аустенитных сталей зависит от степени их облучения. Так, например, в работе [24] было установлено, что вклад мартенситного превращения в упрочнение материала гораздо больше, чем вклад, вносимый накоплением дислокаций. В других работах [7, 25–28] была зарегистрирована необычно высокая пластичность в аустенитных сталях, облученных до очень высоких повреждающих дозы, проявление которой связывают с $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращением. Контролируемое использование мартенситного перехода для увеличения пластичности материала в высокооблученных аустенитных сталях обсуждается в работах [24, 29].

Известно, что мартенситное $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращение, которое протекает при низкотемпературном деформировании облученных аустенитных хромоникелевых сталей, зависит от множества факторов, например, температуры деформации и степени облучения [7, 30–31]. Несмотря на то, что в настоящее время имеется значительное количество работ по исследованию влияния облучения на механические характеристики метастабильных сталей, количество статей, посвященных исследованию структурно-фазовых превращений в процессе деформации облученных нейтронами аустенитных сталей, сильно ограничено. В связи с важной ролью мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения в формировании физико-механических свойств материалов, исследование закономерностей образования мартенситной фазы при пластической деформации является необходимым и практически важным предметом изучения для дальнейшего при-

менения в радиационном материаловедении. В работах [32–34] были представлены данные о кинетике накопления мартенситной фазы при одноосном растяжении стали 12X18H10T, облученной до максимального флюенса тепловых нейтронов $2 \cdot 10^{20}$ н/см². Представляет научный интерес сравнительное исследование $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения при деформации на одноосное растяжение и сжатие аустенитных сталей, облученных до более высоких повреждающих доз.

Исследованию особенностей мартенситного превращения в процессе пластической деформации (одноосное растяжение и сжатие) аустенитных сталей 12X18H10T и AISI304, облученных тепловыми нейтронами до флюенса тепловых нейтронов $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² ($2,2 \cdot 10^{20}$ н/см² при $E > 0,1$ МэВ) посвящена настоящая работа.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Исследовали широко используемые в реакторостроении нержавеющие хромоникелевые стали аустенитного класса – 12X18H10T, AISI304. Химический состав данных сталей представлен в таблице 1 в весовых процентах согласно ГОСТ 5632-2014 и стандарта ASTM [35]. С помощью растрового электронного микроскопа Hitachi TM4000, оборудованного приставками энергодисперсионной спектроскопии ЭДС, было определено точное содержание легирующих компонентов. Результаты приведены в таблице 2.

Образцы подвергали термической обработке – аустенизирующий отжиг при 1050 °С в течение 30 минут. Далее часть образцов была облучена в активной зоне исследовательского реактора ВВР-К (ИЯФ, Алматы) при температуре не выше 80 °С до максимального флюенса тепловых нейтронов $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² ($2,2 \cdot 10^{20}$ н/см² при $E > 0,1$ МэВ), что соответствует $\sim 0,26$ сна (оценка проведена по методу, описанному в работе [4]). После облучения образцы находились в хранилище в течение 5 лет для снижения уровня наведенной активности. Следует отметить, что радиоактивность каждого облученного образца превышала ~ 10 мЗв/ч, что значительно ограничивало время контакта.

Для выполнения экспериментальной части работы по проведению механических испытаний на одноосное растяжение были использованы цилиндрические

образцы в форме гантелей с начальной расчетной длиной рабочей области 8–9 мм (в зависимости от марки стали) и диаметром 1,7 мм (рисунок 1, а). Цилиндрические части образцов, используемые для закрепления в захватах («головки»), после испытаний на растяжение, были использованы в качестве заготовок для цилиндрических образцов для проведения экспериментов на одноосное сжатие (рисунок 1, б). Начальный диаметр образцов на сжатие составлял 5 мм для образцов, изготовленных из стали AISI304 и 6 мм – из стали 12X18H10T.

Механические испытания на растяжение в данной работе проводились по методике аналогичной применяемой для высокооблученных образцов [7]. Испытания проводились при комнатной температуре со скоростью деформирования 0,5 мм/мин на универсальной разрывной машине «Instron 1195» (Англия). В процессе одноосного растяжения без остановки разрывной машины (in situ) регистрировались геометрические размеры пробы и ее намагнитченность. Для этого на рабочую часть цилиндрического образца до деформации были нанесены маркеры имеющие хорошую адгезию к поверхности металла и способные деформироваться вместе с металлической подложкой, которые позволяли регистрировать изменение формы и размеров исследуемого образца при деформировании. Данное формоизменение регистрировалось с помощью зеркальной цифровой фотокамеры «Canon EOS 5D MARK IV» с объективом «Canon MACRO 100mm». Полученные результаты использовали для расчета локальных «истинных» деформаций (ϵ) и напряжений (σ_{true}) методом «цифровой маркерной экстензометрии» [36]. Измерение количества образующейся и накапливающейся ферромагнитной α' -фазы определяли непосредственно в процессе растяжения с помощью феррозонда «FERITSCOPE MP30», Fischer, откалиброванного по заводским эталонам.

Механические испытания на сжатие образцов каждого вида стали выполнялись поэтапно до достижения итоговой нагрузки 4000 кг. Каждые 500 кг машина останавливалась и образец извлекался для измерения геометрических размеров и содержания магнитной фазы. Для этих целей использовались цифровой микрометр и феррозонд «FERITSCOPE MP30».

Таблица 1. Химический состав сталей 12X18H10T и AISI304 согласно ГОСТ 5632-2014 и стандарта ASTM [35], вес %

Материал	Fe	C	Si	Cr	Mn	Ni	P	S	Ti
12X18H10T	основа	<0,12	<0,8	17-19	<2,0	9-11	<0,04	<0,02	5-C-0,8
AISI304	основа	0,07	0,75	17,5-19,5	2,0	8-10,5	0,045	0,03	–

Таблица 2. Химический состав сталей 12X18H10T, и AISI304, определенный с помощью РЭМ И ЭДС, вес %

Материал	Fe	Si	Cr	Mn	Ni	Ti
12X18H10T	основа	0,4	17,7	0,9	9,8	1
AISI304	основа	0,4	18,2	1,4	8,6	0

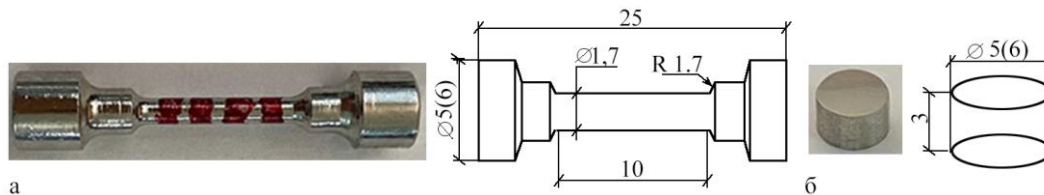


Рисунок 1. Внешний вид и геометрические размеры образцов на одноосное растяжение (а) и сжатие (б)

Расчет кривых пластической деформации в экспериментах на сжатие выполнялся по формулам:

$$\sigma = \frac{F}{S},$$

где σ – «истинное» напряжение; F – нагрузка; S – площадь поперечного сечения цилиндра:

$$\varepsilon = \frac{h_0 - h}{h_0},$$

где ε – «истинная» локальная деформация; h_0 – начальная высота цилиндра; h – высота цилиндрического образца в момент сжатия. Представленные в работе данные получены усреднением, как минимум трех экспериментов.

Для определения кинетики мартенситного превращения использовали следующее уравнение Olson-Cohen [19]:

$$f(\alpha') = 1 - \exp\{-\beta[1 - \exp(-\alpha\varepsilon)]^n\}, \quad (1)$$

где α и β – кинетические параметры, зависящие от температуры: α – определяет тенденцию аустенитной матрицы к образованию полос сдвига при деформации, зависит обратным образом от энергии дефекта упаковки, β – определяет вероятность того, что в результате пересечения этих полос образуется зародыш мартенситной фазы. n – показатель степени равный 4,5.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

1. Микроструктура исследуемых сталей до деформации

Микроструктура аустенитных нержавеющей сталей 304, 12X18H10T после аустенизирующего отжига приведена на рисунке 2. В результате термообработки структура сталей AISI 304 и 12X18H10T представляет аустенитную матрицу с почти нулевым содержанием феррита, что подтверждается магнитометрическими измерениями. Относительно низкая прочность и высокая пластичность исследуемых сплавов обусловлены крупными $\sim 45\text{--}50$ мкм аустенитными зернами, движение дислокаций в пределах которых, не затруднено структурными дефектами. Плотность дислокаций в исходных материалах относительно невелика ($\sim 8,2 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$). В стали 12X18H10T дисперсные карбиды, предположительно карбиды титана, расположены в матрице материала и по границам зерен. В стали AISI 304 по границам зерен выделения вторичных фаз не наблюдаются, но

в матрице имеются отдельные включения, содержащие P и Si (показаны стрелками на рисунке 2).

2. Определение устойчивости аустенита к мартенситному превращению в процессе деформации

Для определения устойчивости аустенитных сталей к мартенситному превращению в процессе деформации в зависимости от химического состава рассматриваются различные эмпирические соотношения. Так, например, никелевый эквивалент позволяет оценить стабильность матрицы материала, основываясь на содержании в стали таких легирующих элементов, как марганец, азот, углерод [37]:

$$Ni_{eq} = Ni + 0,65Cr + 0,98Mo + 1,05Mn + 0,35Si + 12,6C. \quad (2)$$

Так, как в процессе пластической деформации образование мартенситной фазы происходит на пересечении полос сдвига, которые могут состоять из дефектов упаковки, двойников или ε -фазы, большое влияние на мартенситное превращение оказывает энергия дефекта упаковки (γ_{SFE}). Так, например, при значениях $\gamma_{SFE} < 20$ мДж/см² наблюдается прямая схема фазового перехода $\gamma \rightarrow \alpha'$. Сложная схема $\gamma \rightarrow \varepsilon \rightarrow \alpha'$ с промежуточным образованием двойников, ε -фазы наблюдается в сталях с энергией дефекта упаковки $\gamma_{SFE} > 20$ мДж/см². В настоящей работе для оценки дефекта упаковки в зависимости от содержания химических элементов использовали следующее эмпирическое соотношение [38]:

$$\gamma_{SFE} = 2,2 + 1,9Ni - 0,016Cr + 0,77Mo + 0,5Mn + 2,9Si + 40C - 3,6N. \quad (3)$$

Используя эмпирические уравнения (2, 3) были получены величины, определяющие устойчивость аустенита к мартенситному превращению (таблица 3). Значения никелевого эквивалента и энергии дефекта упаковки для стали AISI304 ниже, чем для стали 12X18H10T. Это означает, что данная сталь более склонна к мартенситному превращению.

Таблица 3. Значение никелевого эквивалента и энергии дефекта упаковки для сталей 12X18H10T и AISI304

Материал	Ni_{eq} , вес %	γ_{SFE} , мДж/см ²
12X18H10T	23,7	26,1
AISI304	23,0	23,3

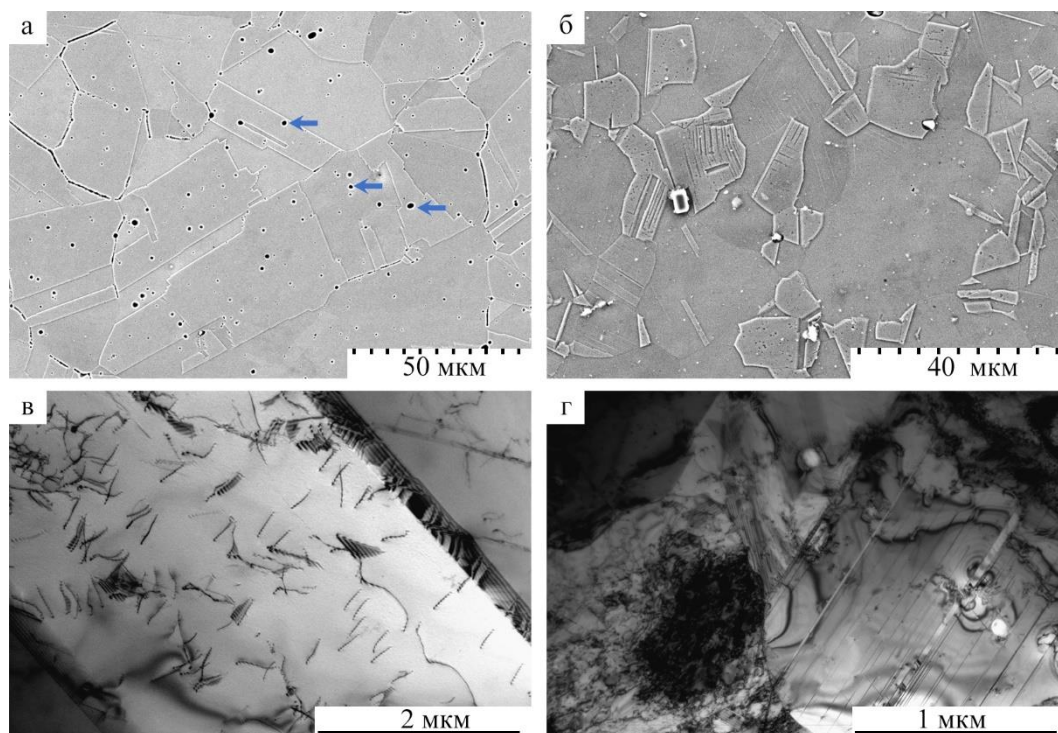


Рисунок 2. Микроструктура аустенитных нержавеющей сталей 304 (а, в), 12Х18Н10Т (б, г) после аустенизирующего отжига

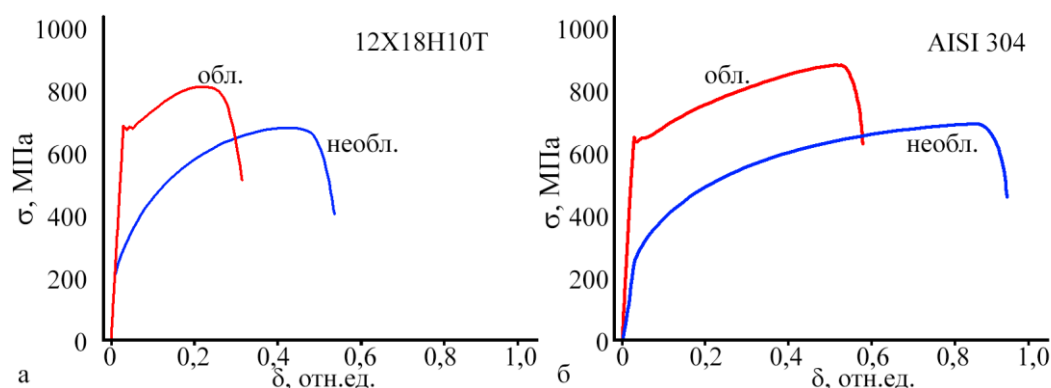


Рисунок 3. Типичные инженерные диаграммы растяжения сталей 12Х18Н10Т (а) и AISI304 (б) в исходном состоянии и после облучения нейтронами до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см²

3. Механические характеристики сталей 12Х18Н10Т и AISI304 в экспериментах на растяжение

Типичные инженерные диаграммы растяжения для сталей 12Х18Н10Т и AISI304 в необлученном состоянии и после нейтронного облучения до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² представлены на рисунке 3. В результате обработки первичных кривых растяжения были определены значения пределов текучести (σ_{02}), пределов прочности (σ_B), равномерной ($\delta_{равн}$) и общей ($\delta_{полн}$) относительной деформации, которые представлены в таблице 4.

В необлученном состоянии обе исследуемые стали обладают хорошими механическими характеристиками. После начала пластического течения образцы испытывают равномерное упрочнение вплоть до

предела прочности. На инженерной диаграмме, соответствующей стали 12Х18Н10Т, наблюдается площадка текучести при максимальной нагрузке, свидетельствующая о том, что процесс образования «шейки» — переход к локализованному течению в данной стали занимает более длительное время. Внешний вид инженерных диаграмм сталей, облученных нейтронами до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см², значительно отличается — появился зуб текучести, типичный для многих ОЦК материалов и высокооблученных модельных металлов с ГЦК решеткой. Появление зуба текучести ранее наблюдали только в образцах, облученных до десятков сна [25–26]. Нейтронное облучение привело к повышению значений прочностных характеристик и уменьшению характеристик пластичности.

Таблица 4. Характеристики прочности и пластичности образцов сталей 12X18H10T и AISI304. Погрешность в определении характеристик прочности 8%, пластичности – 6%.

Материал	Флюенс тепловых нейтронов, н/см ²	Предел текучести, МПа	Предел прочности, МПа	Равномерная деформация, %	Полная деформация, %
12X18H10T	0	220	678	37,4	50,9
	$3,7 \cdot 10^{20}$	680	812	17,4	28,9
AISI304	0	252	696	76,9	90,2
	$3,7 \cdot 10^{20}$	640	884	48,6	56,2

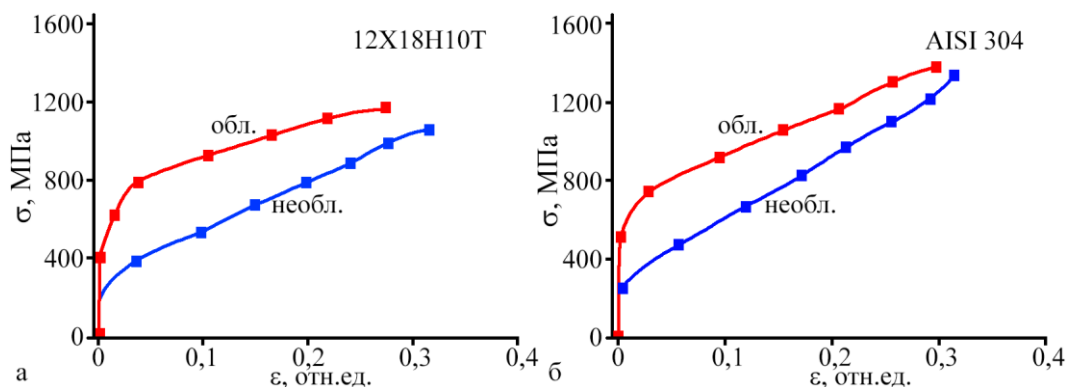


Рисунок 4. Диаграммы сжатия в координатах «истинные напряжения (σ) – локальная деформация (ϵ)» для сталей 12X18H10T (а) и AISI304 (б) в исходном состоянии и после облучения нейтронами до флюенса тепловых нейтронов $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см²

Из таблицы 4 видно, для стали 12X18H10T под действием нейтронного облучения предел текучести увеличился в 3 раза, а предел прочности при этом увеличился только на ~20%. Для стали AISI304 значения предела текучести и предела прочности возросли на ~153% и ~27% соответственно. Упрочнение связано с накоплением в аустенитной структуре материала дефектов радиационной природы, которые повышают напряжение начала движения дислокаций. Аустенитные стали отличаются высокой пластичностью, которая заметно снижается после нейтронного облучения. Полное относительное остаточное удлинение стали AISI304 уменьшилось после облучения до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² на 34% относительно необлученного состояния, а удлинение стали 12X18H10T на 22%. Видно, что при аналогичных характеристиках прочности, пластичность облученной стали AISI304 в два раза выше, чем стали 12X18H10T. Данный факт обусловлен более интенсивным протеканием мартенситного превращения в процессе пластической деформации стали AISI304.

4. Закономерности прямого мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ перехода в сталях в экспериментах на сжатие

В результате экспериментов на сжатие для каждого образца исследуемых сталей были получены инженерные кривые, представленные на рисунке 4. Кривые упрочнения гладкие, участка разупрочнения, наблюдаемого для результатов экспериментов на растяжение, характеризующего образование геометрической макро-шейки не наблюдается. Напряжение течения в облученном до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² ма-

териале выше, чем в необлученном, что говорит о его большей прочности.

Для исследуемых стальных образцов в процессе испытаний на одноосное сжатие регистрировали кривые изменения содержания α' -фазы в координатах «мартенситная α' -фаза, $V\alpha$ – напряжения, σ » и «мартенситная α' -фаза, $V\alpha$ – деформация, ϵ » (рисунки 5, 6). Анализ полученных данных показал, что начало $\gamma \rightarrow \alpha'$ перехода при сжатии происходит несколько раньше по шкале деформации в облученной стали 12X18H10T, чем в необлученной. При этом, стоит отметить, что при сжатии стали AISI304 кривые мартенситного превращения в зависимости от деформации практически одинаковы для облученных и необлученных образцов.

Рассчитанные значения параметров α и β из уравнения (1) для сталей 12X18H10T и AISI304, а также квадратов невязки приведены в таблице 5. Из таблицы 5, видно, что уравнение Olson-Cohen хорошо описывает кинетику мартенситного превращения в исследуемые материалы при сжатии (квадрат невязки близок к 1). Коэффициент α для облученных сталей увеличивается в ~2 раза. Параметр β , наоборот, уменьшается в 11 раз для стали 12X18H10T и в 4 раза для стали AISI304. Это свидетельствует о том, что для материалов, облученных нейтронами с энергией $< 0,625$ эВ до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см², тенденция к образованию полос сдвига растет, а вероятность образования зародыша на их пересечении снижается. Расчёт кинетики мартенситного превращения свидетельствует также об уменьшении энергии дефекта упаковки с ростом дозы облучения.

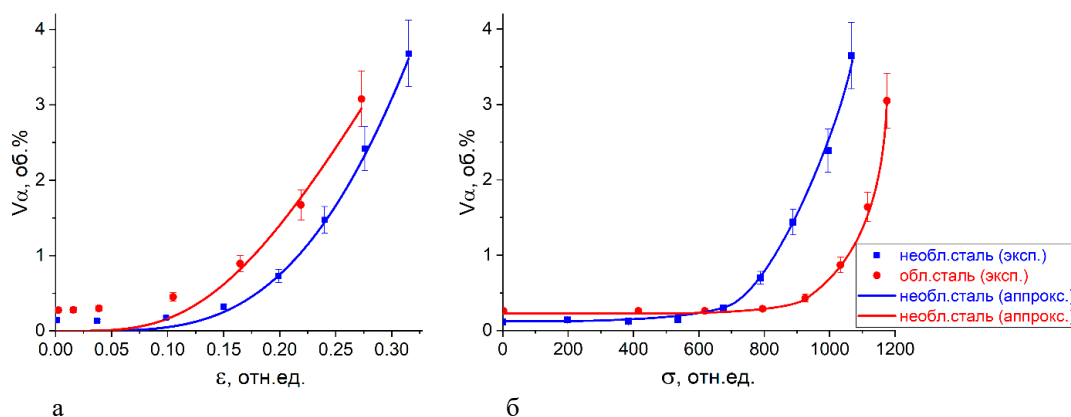


Рисунок 5. Кривые образования мартенситной α' -фазы, в координатах « V_{α} , об.% – ϵ , отн.ед.» (а) и « V_{α} , об.% – σ , МПа» (б) для необлученной стали 12X18H10T и после облучения нейтронами с энергией $< 0,625$ эВ до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см²

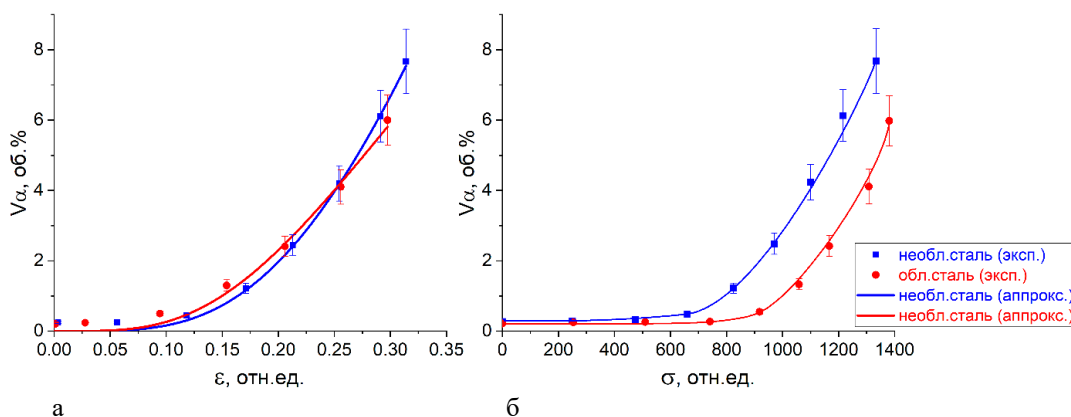


Рисунок 6. Кривые образования мартенситной α' -фазы, в координатах « V_{α} , об.% – ϵ , отн.ед.» (а) и « V_{α} , об.% – σ , МПа» (б) при испытаниях на сжатие для необлученной стали AISI304 и после облучения нейтронами до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см²

Таблица 5. Параметры α и β и их квадраты невязки для сталей 12X18H10T и AISI304

Материал	Флюенс тепловых нейтронов, н/см ²	α	R^2	β	R^2
12X18H10T	0	1,91	0,9989	1,31	0,9989
	$3,7 \cdot 10^{20}$	4,86	0,9897	0,12	0,9897
AISI304	0	2,92	0,9971	0,78	0,9971
	$3,7 \cdot 10^{20}$	4,75	0,9885	0,21	0,9885

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе изучены особенности мартенситного превращения в процессе пластической деформации (одноосное растяжение и сжатие) аустенитных сталей 12X18H10T и AISI304, облученных тепловыми нейтронами до флюенса тепловых нейтронов $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² ($2,2 \cdot 10^{20}$ н/см² при $E > 0,1$ МэВ). Рассчитаны значения никелевого эквивалента и энергии дефекта упаковки для сталей 12X18H10T и AISI304.

Определены механические характеристики исследуемых сталей. Показано, что при одноосном растяжении при аналогичных характеристиках прочности, пластичность необлученной и облученной стали

AISI304 в два раза выше, чем стали 12X18H10T. При этом величина пластичности сталей, облученных нейтронами, ниже на 30%, а на диаграммах растяжения проявляется отчетливо различимый зуб текучести. Кривые упрочнения в экспериментах на сжатие гладкие, при этом напряжение течения в облученном до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² материале выше, чем в необлученном, что говорит о его большей прочности.

Высокая пластичность стали AISI 304 обусловлена более интенсивным протеканием мартенситного превращения в процессе пластической деформации. Были построены кинетические кривые мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращения при испытаниях на растяжение и сжатие для сталей 12X18H10T и AISI304. Рассчитаны кинетические параметры мартенситного превращения из уравнения Olson-Cohen, которые свидетельствуют о том, что для материалов, облученных тепловыми нейтронами до флюенса $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см², тенденция к образованию полос сдвига растет, а вероятность образования зародыша на их пересечении снижается. Впервые было показано, что кинетическое уравнение Olson-Cohen хорошо описывает мартенситное превращение в процессе сжатия материала.

Работа выполнена в рамках реализации ПЦФ по теме ИРН BR21881930 «Реакторные исследования, направленные на обеспечение безопасной и эффективной эксплуатации перспективных ядерных и термоядерных энергетических установок».

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Was G.S. Fundamentals of Radiation Materials Science. – New York, NY: Springer, 2017.
2. Калинин Б.А., Платонов, П.А., Чернов, И.И., Штромбах, Я.И. Физическое материаловедение: Учебник для ВУЗов. Том 6. Часть 1. Конструкционные материалы ядерной техники. – Москва: МИФИ, 2008. – 672 р. [Kalin B.A., Platonov, P.A., Chernov, I.I., Shtrombakh, Ya.I. Fizicheskoe materialovedenie: Uchebnik dlya VUZov. Vol. 6. Part 1. Konstruktsionnye materialy yadernoy tekhniki. – Moscow: MIFI, 2008. – 672 p. (In Russ.)]
3. Zinkle S.J., Was G.S. Materials challenges in nuclear energy // Acta Materialia. – 2013. – Vol. 61, № 3. – P. 735–758.
4. Garner F.A. 3.02 – Radiation-Induced Damage in Austenitic Structural Steels Used in Nuclear Reactors // Comprehensive Nuclear Materials (Second Edition). – Oxford: Elsevier, 2020. – P. 57–168.
5. Yvon P. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors. – Elsevier, 2017. – 684 p.
6. Murty K.L. Is neutron radiation exposure always detrimental to metals (steels)? // Nature. – 1984. – Vol. 308, No. 5954. – P. 51–52.
7. Merezhko M.S., Merezhko D.A., Rofman O.V., Dikov A.S., Maksimkin O.P., Short, M.P. Macro-Scale strain localization in highly irradiated stainless steel investigated using digital image correlation // Acta Materialia. – 2022. – Vol. 231 – P. 117858.
8. Zhou W., Yang Y., Zheng G., Woller K.B., Stahle P.W., Minor A.M., Short M.P. Proton irradiation-decelerated intergranular corrosion of Ni-Cr alloys in molten salt // Nat Commun. – 2020. – Vol. 11, No. 1. – P. 3430.
9. Byun T.S., Farrell K. Plastic instability in polycrystalline metals after low-temperature irradiation // Acta Materialia. – 2004. – Vol. 52, No. 6. – P. 1597–1608.
10. Byun T., Hashimoto N. Strain localization in irradiated materials // Nucl. Eng. and technology. – 2006. – Vol. 38, No. 7. – P. 619.
11. Merezhko M., Merezhko D. Localization of Plastic Deformation in the Copper and Stainless Steels Samples, Irradiated with Neutrons // J. of Physics: Conference Series / 18. – IOP Publishing. – 2022. – Vol. 2155. – P. 012009.
12. Merezhko M.S., Maksimkin O.P., Merezhko D.A., Shaimerdenov A.A., Short M.P. Parameters of Necking Onset during Deformation of Chromium–Nickel Steel Irradiated by Neutrons // Physics of Metals and Metallography. – 2019. – Vol. 120, No. 7. – P. 716–721.
13. Garner F. Irradiation Performance of Cladding and Structural Steels in Liquid Metal Reactors // Materials Science and Technology. – Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. – 2006. – 540 p.
14. Gushev M.N., Busby J.T., Tan L., Garner F.A. Magnetic phase formation in irradiated austenitic alloys // J. of Nucl. Mater. – 2014. – Vol. 448, No. 1–3. – P. 294–300.
15. Merezhko D.A., Merezhko M.S., Maksimkin O.P., Gushev M.N., Garner F.A. Radiation-induced ferrite formation as a potential issue in PWR austenitic internals following plant life extension // Proceedings of 19th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, EnvDeg 19th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, EnvDeg 2019 / 16. – Boston, MA. – 2019. – P. 615–624.
16. Merezhko D.A., Gushev M.N., Merezhko M.S., Rofman O.V., Rosseel T.M., Garner, F.A. Morphology and elemental composition of a new iron-rich ferrite phase in highly irradiated austenitic steel // Scripta Materialia. – 2022. – Vol. 215 – P. 114690.
17. Andresen P.L., Was G.S. A historical perspective on understanding IASCC // J. of Nucl. Mater. – 2019. – Vol. 517 – P. 380–392.
18. Ehrnstén U., Andresen P.L., Que Z. A review of stress corrosion cracking of austenitic stainless steels in PWR primary water // J. of Nucl. Mater. – 2024. – Vol. 588 – P. 154815.
19. Olson G.B., Cohen M. Kinetics of strain-induced martensitic nucleation // MTA. – 1975. – Vol. 6, No. 4. – P. 791–795.
20. Weidner A., Hangen U.D., Biermann H. Nanoindentation measurements on deformation-induced α' -martensite in a metastable austenitic high-alloy CrMnNi steel // Philosophical Magazine Letters. – 2014. – Vol. 94, No. 8. – P. 522–530.
21. Bleck W., Guo X., Ma Y. The TRIP Effect and Its Application in Cold Formable Sheet Steels: The TRIP Effect and Its Application in Cold Formable steel research int. – 2017. – Vol. 88, No. 10. – P. 1700218.
22. Soleimani M., Kalhor A., Mirzadeh H. Transformation-induced plasticity (TRIP) in advanced steels: A review // Mater. Sci. and Eng.: A. – 2020. – Vol. 795 – P. 140023.
23. Mao W., Gao S., Gong W., Bai Y., Harjo S., Park M.-H., Shibata A., Tsuji N. Quantitatively evaluating respective contribution of austenite and deformation-induced martensite to flow stress, plastic strain, and strain hardening rate in tensile deformed TRIP steel // Acta Materialia. – 2023. – Vol. 256 – P. 119139.
24. Wharry J.P., Mao K.S. The role of irradiation on deformation-induced martensitic phase transformations in face-centered cubic alloys // J. of Mater. Research. – 2020. – Vol. 35, No. 13. – P. 1660–1671.
25. Gushev M.N., Maksimkin O.P., Osipov I.S., Garner F.A. Anomalous large deformation of 12Cr18Ni10Ti austenitic steel irradiated to 55dpa at 310°C in the BN-350 reactor // J. of Nucl. Mater. – 2009. – Vols. 386–388. – P. 273–276.
26. Sorokin A.A., Margolin B.Z., Kursevich I.P., Minkin A.J., Neustroev V.S. Effect of neutron irradiation on tensile properties of materials for pressure vessel internals of WWER type reactors // J. Nucl. Mater. – 2014. – Vol. 444, No. 1-3. – P. 373–384.
27. Margolin B., Minkin A., Smirnov V., Sorokin A., Shvetsova V., Potapova V. The radiation swelling effect on fracture properties and fracture mechanisms of irradiated austenitic steels. Part II. Fatigue crack growth rate // J. Nucl. Mater. – 2016. – Vol. 480 – P. 15–24.
28. Hure J., Tanguy B., Ritter C., Bourganell S., Sefta F. Extensive investigation of the mechanical properties of a Chooz A internal component. – 2018 – P. 13.
29. Meric de Bellefon G., Van Duysen J.C. Tailoring plasticity of austenitic stainless steels for nuclear applications:

- Review of mechanisms controlling plasticity of austenitic steels below 400 °C // J. of Nucl. Mater. – 2016. – Vol. 475 – P. 168–191.
30. Mao K.S., Sun C., Shiao C.-H., Yano K.H., Freyer P.D., El-Azab A.A., Garner F.A., French A., Shao L., Wharry J.P. Role of cavities on deformation-induced martensitic transformation pathways in a laser-welded, neutron irradiated austenitic stainless steel // Scripta Materialia. – 2020. – Vol. 178 – P. 1–6.
31. Zhao F., Liu W., Sui H., Fu J., Cheng Y., Zhang J., Duan H. Model for deformation-induced martensitic transformation in irradiated materials // Proc. of the Royal Society A: Math., Phys. and Eng. Sci. – 2023. – Vol. 479, No. 2272. – P. 20220633.
32. Максимкин О.П., Такиева А.М., Налтаев А., Маженов Н., Бердалиев Д.Т., Рахашев Б.К. Особенности локализованной деформации и физико-механические свойства реакторной нержавеющей стали 12X18H10T, облученной тепловыми нейтронами // Вестник Карагандинского университета. Серия «Физика». 2013. – № 4(72). – С. 34–42. [Maksimkin O.P., Takieva A.M., Naltaev A., Mazhenov N., Berdaliev D.T., Rakhashhev B.K. Osobennosti lokalizovannoy deformatsii i fiziko-mekhanicheskie svoystva reaktornoy nerzhaveyushchey stali 12Kh18N10T, obluchennoy teplovymi neytronami // Vestnik Karagandinskogo universiteta. Seriya «Fizika». 2013. – No. 4(72). – P. 34–42. (In Russ.)]
33. Максимкин О.П., Мережко М.С., Мережко Д.А. Кинетика фазового превращения в процессе пластической деформации облученных нейтронами метастабильных сталей 12X18H10T и AISI 304. // Труды семинара «Ядерный потенциал РК». – 2010. – Алматы. – С. 115–118. [Maksimkin O.P., Merezko M.S., Merezko D.A. Kinetika fazovogo prevrashcheniya v protsesse plasticheskoy deformatsii obluchennykh neytronami metastabil'nykh staley 12Kh18N10T i AISI 304. // Trudy seminar «Yadernyy potentsial RK». – 2010. – P. 115–118. (In Russ.)]
34. Максимкин О.П. К вопросу о физической природе эффекта дозового насыщения радиационного упрочнения аустенитных нержавеющей сталей // Вестник НЯЦ РК. – 2013. – Вып. 3(55). – С.10–16. [Maksimkin O.P. On the matter of physical nature of dose saturation for radiation-induced hardening in austenitic stainless steels // NNC RK Bulletin. – 2013. – Issue 3(55). – P.10–16. (In Russ.)]
35. Handbook of Comparative World Steel Standards by ed. J.E. Bringas. – ASTM International: USA. – 850 p.
36. Максимкин О.П., Гусев М.Н., Осипов И.С. Деформационная экстензометрия при механических испытаниях высокорadioактивных металлов и сплавов // Вестник НЯЦ РК. – 2005. – Вып. 1(21). – С. 46–52. [Maksimkin O.P., Gusev M.N., Osipov I.S. Deformation marker extensometry in mechanical trials of high-activity samples of metals and alloys // NNC RK Bulletin. – 2005. – Issue 1(21). – P. 46–52.]
37. Hirayama T., Ogirima M. Influence of chemical composition on martensitic transformation in Fe-Cr-Ni stainless steel // J. of the Japan institute of metals. – 1970. – Vol. 34, No. 5. – P. 507–510.
38. Meric de Bellefon G., Duysen J.C. van, Sridharan K. Composition-dependence of stacking fault energy in austenitic stainless steels through linear regression with random intercepts // J. of Nucl. Mater. – 2017. – Vol. 492. – P. 227–230.

ВВР-К РЕАКТОРЫНДАҒЫ НЕЙТРОНДАРМЕН СӘУЛЕЛЕНЕТІН АУСТЕНИТТІК ТОТ БАСПАЙТЫН БОЛАТТЫҢ ДЕФОРМАЦИЯЛАНУ ПРОЦЕСІНІҢ ФАЗАЛЫҚ-ҚҰРЫЛЫМДЫҚ ӨЗГЕРІСТЕРІ

А. В. Коломийцева, Д. А. Мережко*, М. С. Мережко

ҚР ЭМ «Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: nallika@gmail.com

Жұмыста термиялық нейтрондармен $3,7 \cdot 10^{20}$ н/см² флюенспен сәулеленетін 12X18H10T және AISI304 аустенитті болаттардың пластикалық деформациясы (бір осьті созылу және қысу) кезінде мартенситтік түрлену ерекшеліктері зерттелді. 12X18H10T және AISI304 болаттар үшін никель эквивалентінің мәндері және қабаттасудың ақаулық энергиясы есептелді. AISI304 болаты мартенситтік түрленуге көбірек бейім екені сонымен қатар бір осьтік керілу кезінде зерттелетін болаттардың механикалық сипаттамалары анықталды. Ұқсас беріктік сипаттамалары бар сәулеленген AISI304 болаттың икемділігі 12X18H10T болаттан екі есе жоғары екендігі көрсетілген. Бұл факт AISI304 болатының пластикалық деформациясы кезінде мартенситтік трансформацияның неғұрлым қарқынды болуына байланысты.

Түйін сөздер: аустениттік болат, құрылымдылық материалдар, мартенситті түрлендіру, сәулелену, нейтрондар.

PHASE-STRUCTURAL CHANGES DURING THE DEFORMATION
OF AUSTENITIC STAINLESS STEELS IRRADIATED WITH NEUTRONS
IN THE VVR-K REACTOR

A. V. Kolomiitseva, D. A. Merezko*, M. S. Merezko

RSE "Institute of Nuclear Physics" ME RK, Almaty, Kazakhstan

* E-mail for contacts: nallika@gmail.com

The paper studies the features of martensitic transformation during plastic deformation (uniaxial tension and compression) of austenitic steels 12X18N10T and AISI304 irradiated with thermal neutrons to a fluence of $3.7 \cdot 10^{20}$ n/cm². The nickel equivalent and stacking fault energy values for 12X18N10T and AISI304 steels are calculated. It is established that AISI304 steel is more prone to martensitic transformation. The mechanical characteristics of the studied steels under uniaxial tension are determined. It is shown that with similar strength characteristics, the plasticity of irradiated AISI304 steel is twice as high as that of 12X18N10T steel. This fact is due to the more intense martensitic transformation during the plastic deformation of AISI304 steel.

Keywords: austenitic steel, structural materials martensitic transformation, irradiation, neutrons.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-69-78>

УДК 53.09

ОТЫН ЭЛЕМЕНТІНІҢ МЕМБРАНАСЫ РЕТІНДЕ КЕУЕКТІ КРЕМНИЙДІ ЗЕРТТЕУ

**М. К. Скаков¹, А. М. Жилкашинова², А. Ж. Миниязов², Н. Қантай², А. Қыдырмолла²,
С. Кабдрахманова^{2*}, Н. М. Мухамедова¹, Ғ. Қ. Жанболатова¹**

¹⁾ «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК, Қурчатов, Қазақстан

²⁾ С. Аманжолов атындағы Шығыс Қазақстан университеті, Өскемен, Қазақстан

³⁾ ҚР ҰЯО РМК СЭ ТҚО, Қурчатов, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: nurgan85@mail.ru

Мақалада отын элементінің мембранасы ретінде кеуекті кремнийді зерттеу нәтижелері көрсетілген, мұнда кеуекті кремнийдің өзі матрица, ал толтырғышқа гель протонөткізгіш электролиті жатады. Кремнийдің бастапқы пластиналарындағы кеуектерге химиялық улау жұмыстары жүргізілді. Қалыптасқан құрылымдар үлкен және кіші қуыстар араласқан кеуектердің салыстырмалы түрде біркелкі таралуын көрсетеді. Адсорбциялық порометрия әдісімен кеуекті Si-ге зерттеу жүргізілді. Кеуектердің жалпы көлемі мен мөлшерінің таралуы десорбция изотермасының қисығы бойынша Баррет-Джойнер-Халенда (ВЖН) әдісімен анықталды. Кеуектердің көлемді таралуын талдау нәтижелері микрокеуектерге (микропораларға) (0,35–2 нм), мезокеуектерге (2–10 нм) және үлкен кеуектерге (10–50 нм, 50–200 нм) бөлінетінін көрсетті. Рентгендік фазалық талдау дифрактограмма сызықтарының жазықтық аралық арақашықтықтарында айтарлықтай айырмашылық бар екенін көрсетті. Сонымен қатар протон өткізгіштік кеуекті кремний үлгісінің ылғал сіңіруге тәуелділігі де зерттелген.

Түйін сөздер: отын элементі, кеуекті кремний, құрылым, фаза, адсорбция.

КІРІСПЕ

Қазақстан Республикасында инженерлік білім беру отын элементінің мембранасы ретінде кеуекті кремнийді зерттеуді қоса алғанда, перспективалы технологияларды зерттеу мен дамытуда маңызды рөл атқарады. Зерттеудің бұл бағыты инженерлік білімнің энергетика саласына және тұрақты дамуға айтарлықтай әсер ету әлеуеті бар ғылыми және технологиялық инновацияларға қалай ықпал ететінінің мысалы болып табылады.

Кеуекті кремний және басқа кеуекті жартылай өткізгіш материалдар кеуек пен кеуекті қаңқа параметрлерін басқару мүмкіндігінің көрінуіне байланысты үлкен іргелі және қолданбалы қызығушылық тудырады [1]. Бұл кеуекті кремний алу технологияларын дамыту және оның құрылымы мен физикалық қасиеттерін зерттеу бойынша көптеген жарияланымдарға әкелді. Кеуекті кремнийді белсенді зерттеу оны Оптоэлектроника мен фотоникада [2], сенсорлық жүйелерде [3], биотехнологияда және медицинада практикалық қолданудың кең перспективаларын ашады [4]. Кеуекті кремнийді белсенді зерттеуге қарамастан, қазіргі уақытта кеуекті кремнийді алу технологиясымен де, осы жергілікті гетерогенді материалдың физика-химиялық қасиеттерін диагностикалаумен де байланысты көптеген ашық сұрақтар бар. Атап айтқанда, кеуекті кремнийдің құрылымдық параметрлеріне әсер ету [5], сондай-ақ оның бетінің сипаттамалары туралы егжей-тегжейлі ақпарат алу. Әдебиетте электрохимиялық улаудың әртүрлі жағдайларында алынған кеуекті кремнийді зерттеу бойынша жеке деректер бар [6–8]. Әр түрлі сипаттамалары бар үлгілердің әрқайсысына қатысты осы әдістермен алынған мәліметтерге кешенді талдау

жүргізу де өзекті болып көрінеді. Электрохимиялық улау процесінде түзілген қосылыстар және оның бетіндегі оксидтер кеуекті кремнийдің физикалық қасиеттерін айтарлықтай өзгерте алады [9].

Энергияны түрлендірудің жоғары тиімділігі, отынды оңай сақтау, қоршаған орта температурасында жұмыс істеу сияқты артықшылықтардың арқасында мұндай отын элементтері (ОЭ) болашақтың портативті энергия генераторларын құруға негізгі үміткерлер ретінде үлкен назар аударады. Мұндай құрылғыларды әзірлеу мен жетілдірудегі негізгі тенденциялардың бірі, жаңа материалдарды іздеумен қатар, «кремний» деп аталатын микроэлектроника технологиясын қолдануға негізделген оларды миниатюризациялау болып табылады. Отын элементінде кеуекті кремнийді қолданудың басты артықшылығы – жергілікті наноөлшемді құрылымдарды қалыптастыру мүмкіндігі. Бұл келесі салдарға әкеп соғады: отын ұяшығының функционалдық элементтерінің өлшемдерінің азаюы және соның салдары ретінде жалпы отын элементінің микроминиатюризациясы; монолитті құрылымдарды құру арқылы электр шығындарын азайту; өндіріс процесін автоматтандыру; – полимерлі протон өткізгіш электролиттерді, оның ішінде бос күйдегі сұйықтарды кеуекті кремний құрылымына инкапсуляциялаудың үлкен мүмкіндіктері; әртүрлі функционалды қабаттары бар градиенттік құрылымдарды құру; наноөлшемді каталитикалық бөлшектерді кеуек құрылымына біртіндеп енгізу. Осының барлығы отын элементінің әртүрлі функционалдық элементтерін жасау үшін кеуекті кремний құрылымдарын қолдануды анықтайды: композициялық протон алмасу мембраналары, көп функциялы анодтар және катодтар [10–13]. Сондай-ақ

гельдік электролиттерді қосу арқылы қатты электролит ретінде кеуекті кремнийдің механикалық тұрақты құрылымдарын қалыптастыру мүмкіндігі бар. Кеуекті кремний мен гель электролитіне негізделген композиттер мыналарды қамтиды: кеуекті кремний матрицасының құрылымында гель электролиттерін қолдану мүмкіндігі; мембрананы гельдеу кезінде полимер құрылымынан электролиттің шаймалануын азайту және т.б. Сонымен қатар, полимерлі/иондық сұйық типті полимер гель электролиттер зарядты тасымалдау жүйесі ретінде әрекет етеді, олар негізінен сұйық фаза арқылы жүзеге асырылады, ал полимерлі матрицасының рөлі оның кеуектерінде сұйық электролитті ұстау қабілетіне ие болып табылады [14–16]. Сонымен қатар, полимер матрицасына иондық сұйықтықты енгізу жоғары электр өткізгіштігі мен электрохимиялық тұрақтылығы бар полимерлі электролиттерді алуға мүмкіндік береді, ал олардың негізіндегі мембраналар икемділік пен жақсы механикалық қасиеттермен сипатталады. Отын ұяшықтарында негізінен протонды иондық сұйықтықтар қолданылады, электр өткізгіштігін арттыру үшін полимерлі электролиттердің құрамына пластификаторлар енгізілуі мүмкін, пропилен карбонаты (ПК), этилен карбонаты (ЭК), диметилсульфоксид (ДМСО) сияқты органикалық еріткіштер. Электролитті кеуекті кремний матрицасының құрылымына капсулалау мембрананың механикалық беріктігін айтарлықтай арттырады, Протонды иондық сұйықтықтарды протон өткізгіш мембраналарда протон баламасы (доноры) ретінде пайдалану перспективалары бірқатар жұмыстарда талқыланды [17–20].

Бұл мақаланың мақсаты – отын элементінің мембранасы ретінде композитті кеуекті кремний құрылымдарын әзірлеу және зерттеу, онда кеуекті кремний матрица болып, ал гельді протон өткізгіш электролит толтырғыш болып табылады.

ЗЕРТТЕУ МАТЕРИАЛЫ ЖӘНЕ ӘДІСТЕРІ

Кеуекті құрылымды қалыптастыру үшін үлгіні дайындаудың оңтайлы шарттары біздің бұрын жүргізілген тәжірибелік жұмысымызға негізделген. Кремний үлгінің сынамаларын дайындау бірнеше кезеңмен жүргізілді. Бетінің кристаллографиялық бағдары (100) болатын қалыңдығы 0,4–0,6 мм монокристалды кремний төсеніштерінің бетінде кеуекті кремний үлгілерін алу үшін кезеңдік процесс қолданылды: күміс нитраты тұзынан күміс нанобөлшектері түріндегі катализаторды қолдану; сутегі асқын тотығы бар фтор-сутек қышқылының ерітіндісіндегі кеуектердің өсуі; азот қышқылында улау арқылы күміс нанобөлшектерін жою. Бұрын келесі ерітінділер дайындалған: күміс нитратының 0,05 молярлы сулы ерітіндісі (AgNO_3) және фтор қышқылының (48% концентрлі HF 40–80 секунд ішінде, бөлме температурасында), 37% сутегі асқын тотығуының (H_2O_2) және 45% концентрлі азот қышқылының (HNO_3) сулы ерітіндісі. Әрбір тәжірибе алдында бастапқы кремний төсеніштері табиғи оксидті жоюды қамтитын концентрлі

фтор қышқылында химиялық өңдеуден өтті. Содан кейін пластина ионсыздандырылған суда жуылып, 50–80 °C температурада 10–20 мин. кептіру шкафында кептірілді.

Бірінші кезеңде кремний пластинкасының бетіне күміс бөлшектерінің жұқа қабатын жағу үшін ол (1:1) қатынаста AgNO_3/HF (0,05 моль $\text{AgNO}_3/5$ моль HF) ерітіндісіне батырылды 15–60 секунд. Осыдан кейін пластина екінші $\text{H}_2\text{O}_2/\text{HF}$ ерітіндісіне (37% $\text{H}_2\text{O}_2/5$ моль HF 1:10 қатынасында) 60–110 минутқа батырылды. Бұл кезеңде күміс бөлшектері мен Si арасында тотығу-тотықсыздану реакциясы жүреді. Бұл реакция кезінде күміс бөлшектерімен қапталған кремний аймақтарының химиялық улануы орын алды. Соңғы кезеңде күміс бөлшектері HNO_3 (45%) бөлме температурасында 30–50 с көмегімен жойылды, содан кейін ультрадыбыстық ваннада дистирленген суда 4–7 минут жуылды және кептіру шкафында 40–60 °C температурада 10–15 минут кептірілді.

Кеуекті кремнийді ылғалдандыру (капсулалау) үшін гельді полимерлі электролит ретінде дайын коммерциялық протонды иондық сұйықтық - диэтил-метиламмоний трифлаты (DEMA/TfO) пайдаланылды. Осы мақсатта тереңдігі бойынша кеуекті құрылымы бар кремний мембраналары жасалады. Кеуекті құрылымды электролитпен сіндіру кремний үлгісінің кеуектерінің екі жағына DEMA/TfO ерітіндісін жағып, содан кейін кептіру шкафында 20–40 °C температурада 10–15 минут кептірілді. Электролиттің әсерін азайту үшін кеуекті кремний үлгілері таза түрде зерттелген.

Рентгендік флуоресценттік спектрлік талдау CPB-1M анализаторында жүргізілді. Атмосфералық қысымда талданатын элементтердің диапазоны: Si ден U дейін, энергетикалық спектр 1–36 кВ, рентгендік түтік қуаты 1–50 Вт, үлгіні талдаудың сандық уақыты 600 с (10 мин.).

Рентгендік фазалық талдау (X ray талдау) X PertPRO дифрактометрінде (Malvern Panalytical Empyrean, Нидерланды) жүргізілді. Заттардың кристалдық құрылымдары 0,03° сканерлеу қадамымен монохроматизацияланған мыс (Sica) сәулеленуімен рентгендік дифракцияны қолдану арқылы зерттелді ($\text{K-}\alpha_1$ [$\text{\AA}$] 0,1542). Өлшеу бұрышы 20–100°, рентгендік түтік кернеуі 40 кВ, ток 30 мА, өлшеу уақыты қадамына 1 с және алюминий тікбұрышты көп мақсатты үлгі ұстағыш пайдаланылды (PW1172/01).

Микроқұрылымдық зерттеулер ALTAMET оптикалық микроскобында жүргізілді. Жылтыратылған үлгі арнайы ультрадыбыстық ваннада тазартылған сумен 15 минут ұсталды және беттік тазарту жүргізілді, содан кейін оны азот қышқылында (45%) және фтор қышқылының (48%) ерітінділерінде 30 және 180 минут ұстап, бұл тенденцияны бірнеше рет қайталады, содан кейін оның беткі құрылымы оптикалық микроскоппен бақыланды, жарық өрісі, поляризациясы, дифференциалды-интерференциялық контраст, 5x, 10x, 20x, 40x рет ұлғайтылды.

Үлгілердің морфологиясы мен құрылымы Zeiss Auriga Crossbeam 540 (Германия) жоғары вакуумды растрлық электронды микроскопта зерттелген. SEM-кескіндерінің кеуекті кремний микроқұрылымын сандық талдау үшін ImageJ (Fiji) кескінді талдау бағдарламасы қолданылды.

Модификациядан кейінгі үлгілердің текстуралық сипаттамалары адсорбциялық порометрия (азоттың төмен температуралы адсорбциясы) арқылы анықталады, үлгілерді газсыздандыру үшін 200–220 °C температурада 20 сағат бойы алдын ала вакуумдаудан кейін Autosorb 1 (Quantachrome Instruments, США) аспабында зерттелді, эксперименттік деректерді BET және BJH (Barrett-Joyner-Halenda) әдістерімен келесідей өңделді. Тұрақты температурада (адсорбция изотермасы) V-тің P-ға тәуелділігін анықтау үшін адсорбент (үлгі) 200–300 °C температурада вакуумде газсыздандырылады. BET-тің меншікті ауданы Брунауэр-Эмметт-Теллер (BET) әдісімен өлшенді. Жоғарыда аталған құрылғыда стандартты үлгілердің меншікті бетінің ауданын (Δ) өлшеу қателігі $\pm 2,8\%$ салыстырмалы. Жалпы көлем мен кеуек өлшемінің таралуы десорбция изотермасының қисығынан Барретт-Джойнер-Халенда (BJH) әдісімен анықталды. BJH әдісі адсорбция және десорбция изотермасының қисықтарын және кеуекті материалдардағы кеуек көлемінің өлшемдерін бөлу үшін қолданылады. Үлгінің протон өткізгіштігі импедансометрия әдісімен өлшенді, ал гравиметриялық әдіс құрғақ және дымқыл мембрананы өлшеу арқылы ылғалдың сіңуін анықтады.

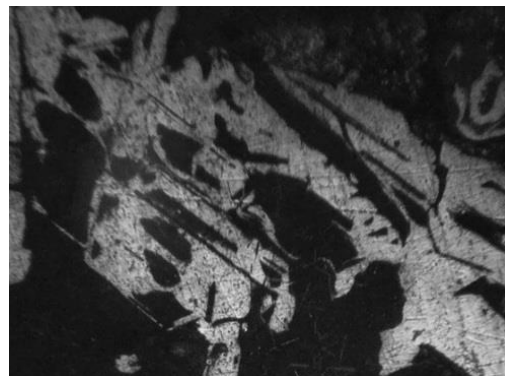
НӘТИЖЕЛЕРДІ ТАЛҚЫЛАУ

Бастапқы кремний пластиналарындағы кеуектерді химиялық улау бойынша тәжірибелік жұмыстар кезең бойынша жүргізілді: күміс нитраты тұзынан күміс катализаторын қолдану; сутегі асқын тотығы бар фторсутек қышқылының ерітіндісіндегі кеуектердің өсуі; азот қышқылында улау арқылы күміс нанобөлшектерін жою.

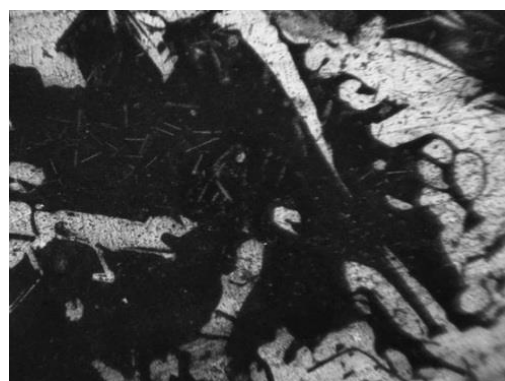
Нәтижесінде қалыңдығы 0,2–0,4 мм зерттеу және модификациялау үшін кеуекті кремний үлгілері алынды, құрылымы 1-суретте көрсетілген. Екі кескін де бір үлгінің әртүрлі аймақтарын көрсетеді. Полимер құрылымдарының әсер ету факторын және кеуекті құрылымды егжей-тегжейлі қарастыру мүмкіндігін азайту үшін гель электролиті капсулаланғанға дейін улаудан кейін кеуекті кремний үлгісі қарастырылады.

Кремний бетінің құрылымында әртүрлі конфигурациядағы тармақталған пішіндер бар екенін көруге болады. Кеуекті кремнийдің бейнесі әртүрлі жарықтық дәрежесіне ие, құрылымның оптикалық бейнесі жарықтың кеуекті құрылыммен өзара әрекеттесуіне байланысты қалыптасты. Кеуектілігі жоғары аймақтар жарықтың сіңуінің жоғарылауына байланысты күңгірт болып көрінеді. Бұл қалыптасқан құрылымдар үлкен және кіші қуыстардың қоспасы бар кеуектердің салыстырмалы түрде біркелкі таралуын көрсетеді, бұл орташа және жоғары кеуектілікті көрсетеді.

Сканерлеуші электронды микроскопия әдісімен гельді электролитпен капсулаланғанға дейін кеуекті кремний үлгісінің микроқұрылымының ерекшелігі де зерттелді. 2-суретте әртүрлі үлкейту кезінде үлгінің микроқұрылымы көрсетілген.



а)

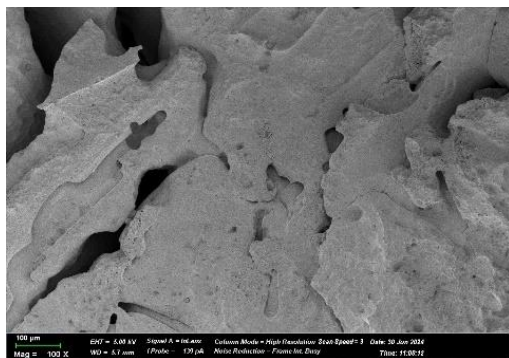


б)

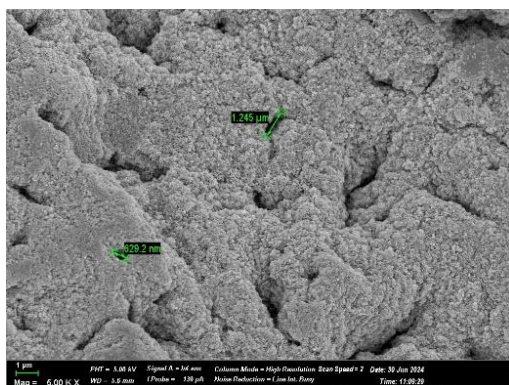
Сурет 1. Оптикалық микроскоппен алынған кеуекті кремний үлгісінің беткі құрылымы: x500 (а), x1500 (б)

Берілген SEM кескіні кеуекті үлгінің микроқұрылымын толығырақ көрсетеді. Құрылым кремний матрицасының ішіндегі арналар желісімен сипатталады. Материалдың кеуектілігі (шұңқырлар мен аңғарлар) анық көрінеді, сонымен қатар суреттерде кеуек сипаттамаларының өлшемдері де көрсетілген. Бұл суреттер кеуекті кремнийдің морфологиясы мен құрылымын бағалауға мүмкіндік береді.

Кеуектердің жиектері (шеттері) және шығыңқы түзілімдермен айқын көрінеді, беті айтарлықтай біркелкі, ал кеуектер бетіне бірдей таралған. Бұл құрылым кеуектіліктің жеткілікті жоғары деңгейін көрсетеді. ImageJ (Fiji) бағдарламасы арқылы кескінді талдау келесі нәтижелерді көрсетті: орташа кеуек ауданы 58,65 пиксель, кеуек тығыздығы бір пиксельге 0,0077 кеуектен. Осы мәліметтерге сүйене отырып, 3-суретте салынған гистограмма кеуек аудандарының таралуын көрсетеді, бұл олардың өлшемдері мен пайда болу жиілігін нақты бағалауға мүмкіндік береді.



а)

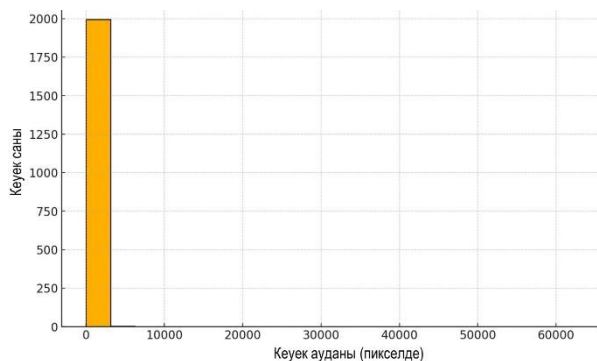


б)



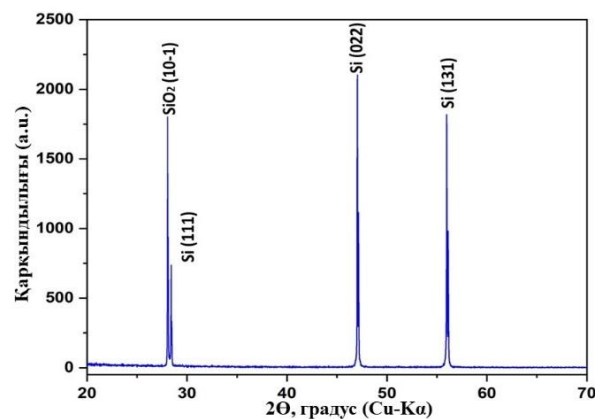
в)

Сурет 2. Электролитсіз кеуекті кремнийдің SEM кескіні: x100 (а), x5000 (б), x10000 (в)

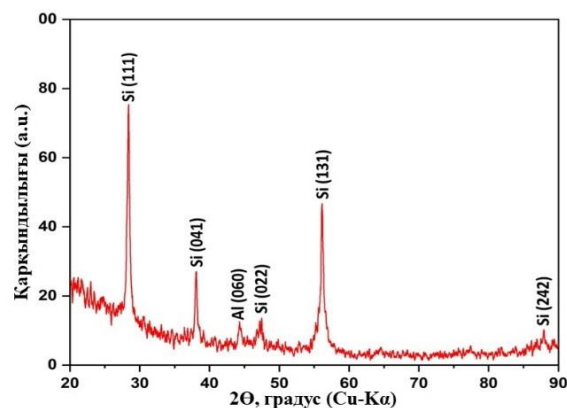


Сурет 3. Кеуек ауданының таралу гистограммасы

4-суретте электрохимиялық улауға дейін және одан кейінгі кремнийдің екі рентгенографиясы көрсетілген (гель электролиті қосылмаған). Фондық факторды азайту және кеуекті материалдың кристалдық құрылымын толығымен талдау үшін гель электролитінің капсуласына дейін улаудан кейінгі кеуекті кремний үлгісі ұсынылған.



а)



б)

Сурет 4. Кеуекті кремнийдің рентгенографиясы: улауға дейін (а); электрохимиялық улаудан кейін (б) (гель электролиті қосылмаған)

Алынған дифрактограмма сызықтарына қарап, үлгінің улауға дейін Миллер индексі (111), (022) және (131) негізі Si – ден тұратын кубтық торға ие екендігі (4а сурет), және (10–1) болатын гексагоналды торға ие SiO_2 екенін көруге болады. Сонымен қатар, Si (111) – шамамен 28° жоғары шыңы кремнийдің (111) жазықтығына сәйкес келетін кристалды кремний фазасының болуын көрсетеді, ал SiO_2 (10–1) кремний диоксидіне сәйкес келеді, бұл кремний бетінде табиғи оксид қабатының болуына байланысты болуы мүмкін. Бұл қабат кремний бетінің тотығуына байланысты материалды ауада өңдеу және сақтау процесінде қалыптасады. Si (022) және Si (131) сәйкесінше (022) және (131) кристалды кремний жазықтықтарын білдіреді. Сызықтардың қарқындылығы, бұл кремнийдің жоғары кристалды

құрылымына тән. Улаудан кейін (46 сурет) $Si(111)$ әлі де бар екенін көруге болады, бірақ қарқындылығы айтарлықтай төмендеді, бұл осы жазықтықтағы кремнийдің кристаллдылығы төмендегенін көрсетеді. Улау процесіне байланысты болуы мүмкін. Жаңа $Si(041)$ шыңы жаңа фазаның пайда болуын немесе улаудың нәтижесінде кристалдың бағытының өзгеруін көрсетуі мүмкін.

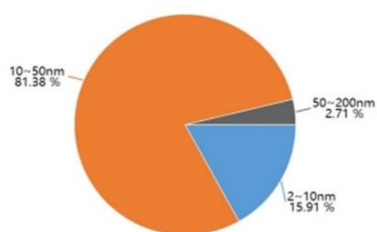
$Al(060)$ шыңы қолданылған реактивтерден, ыдыс-аяқтан немесе ваннадан улау процесінде де пайда болуы мүмкін, ал оның қарқындылығы төмен, оны фон деңгейінде анықтауға болады. $Si(022)$ және $Si(131)$ шыңдары әлі де бар, бірақ олардың қарқындылығы да айтарлықтай төмендейді. Улаудан кейін SiO_2 шыңы жоқ, оны оксид қабатын алып тастаумен түсіндіруге болады. Электрохимиялық улау кремний оксидін тиімді түрде бұзады және жояды, негізінен кристалды кремнийден тұратын кеуекті кремнийді оксид фазаларының айтарлықтай емес мөлшерін қалдырады. Осылайша, улаудан кейін SiO_2 жолағының жоғалуы оксид пленкасының сәтті жойылуын көрсетеді. Шыңдардың жалпы қарқындылығы өңделмеген үлгіге қарағанда әлдеқайда төмен, бұл кремнийдің кеуекті және кристалды емес болып, айтарлықтай құрылымдық өзгерістерге ұшырағанын көрсетеді. Улаудан кейінгі шыңдар кеңейеді, бұл әдетте кішігірім кристаллиттердің болуын немесе тордың деформациясының жоғарылауын көрсетеді, бұл көп сатылы улау процесінің салдары болуы мүмкін.

Кеуекті Si -ге адсорбциялық порометрия әдісімен зерттеулер жүргізілді. ВЈН әдісі адсорбция және десорбциялық изотерма қисықтарын алу үшін, сондай-ақ кеуекті материалдардағы кеуектілік көлемін өлшемдері бойынша бөлу үшін қолданылады. Адсорбциялық порометрия әдісімен зерттеулерінің нәтижелері 5-суретте көрсетілген. Үлгілерді газсыздандыру үшін вакуумдаудан кейін алдын ала өлшенді, содан кейін эксперименттік деректер БЭТ

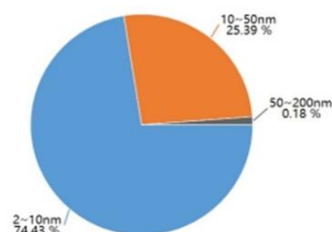
әдістерімен өңделді (Брунауэр-Эммет-Теллер және ВЈН әдісін қолдана отырып, нақты бетті өлшеу жүргізілді). Кеуектердің жалпы көлемі мен мөлшерінің таралуы десорбция изотермасының қисығы бойынша Баррет-Джойнер-Халенда (ВЈН) әдісімен анықталды.

5-суретте кеуекті кремнийдің кеуекті таралуын талдау (гель электролиті қосылмаған үлгі), соның ішінде кеуек көлемі мен ауданының таралу гистогрммалары көрсетілген. Деректер апертура өлшеміне қарай микрокеуектерге (0,35–2 нм), мезокеуектерге (2–10 нм) және үлкен кеуектерге (10–50 нм, 50–200 нм) бөлінеді. Гистогрммалар кеуектер көлемінің де, беттік ауданның да пайыздық таралуын көрсетеді. Бұл ретте көлемі 10–50 нм кеуектер кеуек көлемінің ең үлкен үлесін алады (81,38%), ал өлшемі 2–10 нм болатын кеуектер сәйкесінше жалпы кеуек көлемінің 15,91% құрайды; көлемі 50–200 нм болатын аз үлеске ие, жалпы санның 2,71% құрайды. Кеуек бетінің ауданы келесі нәтижелермен көрсетілген: мезокеуектер (2–10 нм) ең үлкен кеуек бетінің ауданын (74,43%) алады, 10–50 нм кеуектер – бетінің 25,39%, ал макрокеуектер (50–200 нм) ауданның 0,18%-ын ғана алады. Беткі аймақты талдауда мезокеуектер мен микрокеуектердің басым болуы кеуекті кремнийдің құрылымы негізінен бетінің жоғары ауданын қамтамасыз ететін ұсақ кеуектерді қамтитынын көрсетеді. Макрокеуектердегі кеуектер көлемінің үлкен үлесі (10–50 нм) үлкен бос орындардың болуын көрсетеді, материалдың тасымалдау және адсорбциялық қасиеттеріне әсер етуі мүмкін.

Зерттелетін үлгінің азотты адсорбция-десорбциялау изотермалары, бетінің ауданы және кеуек өлшемдері 6, 7-суреттерде көрсетілген. Азоттың адсорбция қисығы IV типке жатады және оны мезокеуекті материал ретінде растайды. Кеуекті кремний H1 типті гистерезисті көрсететіні және цилиндрлік арналардың (канал) бар екені анықталды [2].



Кеуектер көлемінің таралу картасы

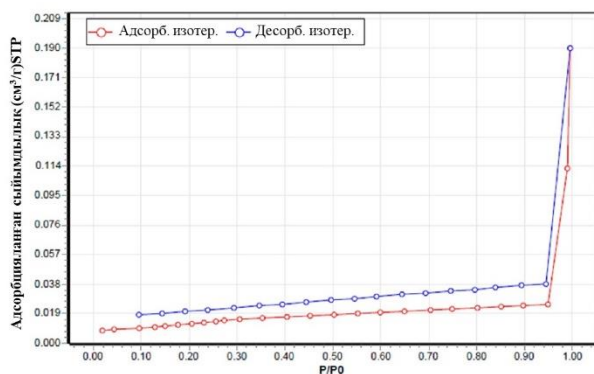


Кеуек аймағының таралу картасы

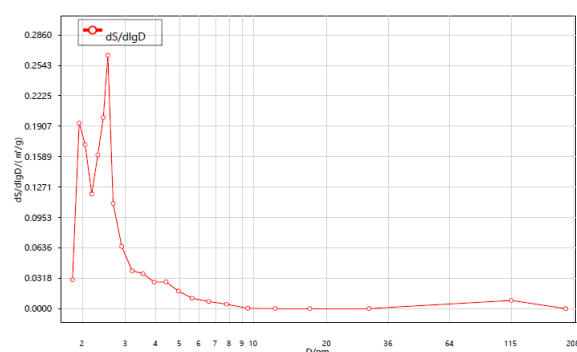
Диафрагма сегменті		Кеуектің көлемі		Кеуек аймағы	
		см ³ /г	%	см ² /г	%
Микро	0,35-2 нм	0,0000	0,00	0,0000	0,00
Мезо	2-10 нм	0,0000	15,91	0,0412	74,43
	10-50 нм	0,0001	81,38	0,0141	25,39
Үлкен	50-200 нм	0,0000	2,71	0,0001	0,18

Сурет 5. Кеуектердің мөлшері бойынша таралуын талдау

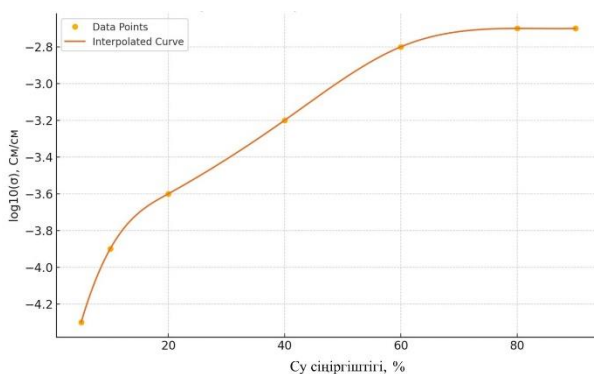
Нәтижелер азотты сорбциялау процесінде материалдың блоктаушы әсерін көрсетеді және сәйкесінше бұл әсер легирленген металдардың орташа кеуекті құрылымдарына қатысты [3]. Азот адсорбция изотермасына сәйкес кеуекті кремний 0-ден 0,2-ге дейінгі салыстырмалы қысымда (P/P_0) мезопор қабырғаларында моноқабатты адсорбцияны көрсетті, кеуекті кремнийдің есептелген бетінің ауданы $0,0508 \text{ м}^2/\text{г}$, ал орташа кеуек диаметрі $\approx 2\text{--}10 \text{ нм}$ болды (7-сурет).



Сурет 6. Азоттың адсорбция-десорбция изотермасы



Сурет 7. Кеуектер көлемінің таралуы

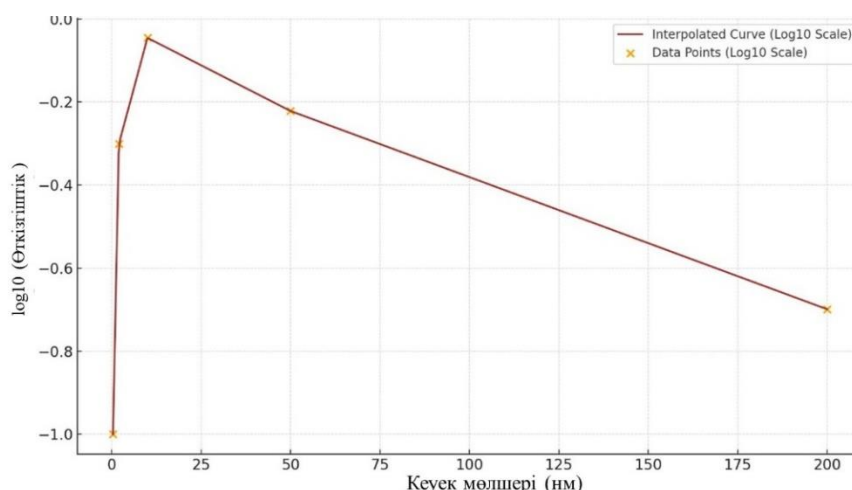


Сурет 8. Кеуекті кремний үлгісінің протон өткізгіштігінің (гель электролиті қосылған) ылғалды сіңіруге тәуелділігі

8-суретте кеуекті кремний үлгісінің протон өткізгіштігінің (гельдік электролит қосылған) ылғал сіңіруіне тәуелділігі көрсетілген. Ұсынылған графикте өткізгіштік логарифмінің гель электролиті қосылған кеуекті кремнийдің ылғал сіңіру дәрежесіне тәуелділігі көрсетілген. Y осі ылғал құрамына байланысты үлгінің өткізгіштігін сипаттайды, X осі салыстырмалы ылғалды сіңіруді пайызбен көрсетеді. График кеуекті кремнийдің ылғалды сіңіру мен өткізгіштігі арасындағы оң корреляцияны көрсетеді. Бұл сипаттама кеуекті кремнийде болатын және гель электролитімен әрекеттесетін судың протондардың қозғалғыштығын арттыруға ықпал ететіндігімен байланысты болуы мүмкін, бұл өткізгіштіктің жоғарылауына әкеледі. Ылғалды сіңірудің төмен мәндерінде өткізгіштік дерлік тұрақты және төмен болып қалады. Ылғалды сіңіру жоғарылаған сайын (20–30% кейін) өткізгіштіктің айтарлықтай өсуі байқалады. Ылғалды сіңірудің белгілі бір шегіне жеткенде (шамамен 80%) өткізгіштік тұрақтанады, бұл кеуекті материалдың сумен қаныққандығын көрсетеді, ал гель-электролит материалдың ылғалды ұстау қабілетін жақсартады, бұл белгілі бір ылғалдылық деңгейінде өткізгіштікті арттыруға көмектеседі.

Сондай-ақ, кеуек өлшемдерінің протон өткізгіштігіне әсерін талдау жүргізілді. Кеуек өлшемдерін бөлу бойынша жүргізілген зерттеулер (5-Сурет) кеуекті кремний үлгілері және гельді электролит (8-Сурет) қосылған кеуекті кремний үлгісінің протон өткізгіштігінің тәуелділігін анықтау бойынша зерттеулер кеуек мөлшерінің протон өткізгіштігіне әсерін анықтауға мүмкіндік берді (9-Сурет).

Графикте үлгінің протон өткізгіштігінің логарифмдік масштабта ($\log_{10}$) көрсетілген кеуек өлшеміне тәуелділігі көрсетілген. Қысық эксперименттік нүктелерге негізделген тегістелген тәуелділікті білдіреді, бұл кеуек өлшемдерінің өткізгіштікке әсерінің жалпыланған көрінісін алуға мүмкіндік береді. Көлденең осьте кеуекті кремнийдің кеуектерінің мөлшері $0,35 \text{ нм}$ микропоралардан үлкен кеуектер 200 нм дейінгі аралығында көрінеді, тік осьте протон өткізгіштігі көрсетілген. Графиктен $0,35\text{--}10 \text{ нм}$ диапазонындағы кеуек өлшемдерінде өткізгіштік логарифмінің айтарлықтай өсуі байқалады, бұл ылғалды ұстап тұру және протондарды тасымалдау үшін қол жетімді бетінің ұлғаюымен байланысты. Өткізгіштік шыңы 10 нм аймақта жетеді, онда кеуек құрылымы ылғалды тиімді сақтайды және гель электролитімен әрекеттеседі. $50\text{--}200 \text{ нм}$ кеуек мөлшері ұлғайған кезде өткізгіштік біртіндеп төмендейді, өйткені үлкен кеуектер көлем бірлігіне аз беткей береді, бұл ылғалды ұстап тұру мүмкіндігін шектейді және протонды тасымалдау тығыздығын төмендетеді.



Сурет 9. Кеуекті электролит қосылған кеуекті кремний үлгілерінің протон өткізгіштігінің кеуек өлшеміне тәуелділігі

ҚОРЫТЫНДЫ

Отын элементтерінде кеуекті кремнийді қолданудың басты артықшылығы – ол жергілікті өлшемді құрылымдарды қалыптастыру мүмкіндігін тудырады, монокристаллдық құрылымдарды құру есебінен электрлік шығындарды азайтады, полимерлі протон өткізгіш электролиттерді кеуекті кремний құрылымына капсуляциялауға кең мүмкіндіктер тудырады, жергілікті кеуек құрылымына нано өлшемді каталитикалық бөлшектерді енгізу және т.б. Мұның бәрі отын ұяшығының әртүрлі функционалды элементтерін жасау үшін кеуекті кремний құрылымдарын пайдалануды анықтайды: композициялық протон алмасу мембраналары, көп функциялы анодтар мен катодтар және т.б.

Жүргізілген жұмыстар нәтижесінде қалыңдығы 0,2–0,4 мм кеуекті кремнийдің үлгілері алынды. Бұл қалыптасқан құрылымдар үлкен және кіші қуыстардың қоспасы бар кеуектердің салыстырмалы түрде біркелкі таралуын көрсетті, бұл орташа және жоғары кеуектілікті көрсетеді. Құрылымдар материалдың айқын көрінетін кеуектілігімен (шұңқырлар мен ойыстар) сипатталады, бұл ретте кеуектер бетінде біркелкі таралады. Бұл құрылым кеуектіліктің жеткілікті жоғары деңгейін көрсетеді.

Кеуек көлемінің таралуын талдау деректердің апертура өлшеміне байланысты микрокеуектерге (0,35–2 нм), мезокеуектерге (2–10 нм) және үлкен кеуектерге (10–50 нм, 50–200 нм) бөлінетінін көрсетеді. Кеуек көлемінің ең үлкен үлесін 10–50 нм өлшемді кеуектер алады (81,38%), ал өлшемі 2–10 нм болатын кеуектер жалпы кеуек көлемінің сәйкесінше 15,91%, өлшемі 50–200 нм кеуектер шағын үлеске ие, ол жалпы көлемнің 2,71% құрайды.

Рентгендік фазалық талдау дифрактограмма сызықтарының жазықтық аралық арақашықтығында айтарлықтай айырмашылық бар екенін көрсетті. Улауға дейін кремний жоғары кристаллдылыққа ие болып табылады, оны жоғары және қарқынды дифракциялық шыңдар көрсетеді. Улаудан кейін кристаллдылық төмендейді, бұл төмен қарқындылықпен және кең

шыңдармен дәлелденеді. Улаудан кейін шыңның қарқындылығының төмендеуі кеуекті кремний құрылымының кристалды аймақтарының кішірейгенін көрсетеді. Шыңдардың кеңеюі мұны одан әрі растайды, бұл өңдеу процесі кремний кристаллиттерінің өлшемін азайтты немесе торға айтарлықтай деформация енгізді деп болжанды. Электрохимиялық улау кезінде кеуектердің пайда болуы кристалдық құрылымды бұзады, рентгендік дифракция шыңдарының қарқындылығын төмендетеді және дифракциялық көріністі өзгертеді. Бұл кремнийдің кеуекті материалға айналуымен сәйкес келеді. Рентген сәулелерінің дифракциялық үлгілері кремнийдің жоғары кристалдық күйден электрохимиялық улау нәтижесінде біршама ретсіз кеуекті құрылымға айналуын анық көрсетеді. Жаңа фазалардың пайда болуы немесе кристаллографиялық бағдардың өзгеруі де айқын көрінеді, бұл кремний микроқұрылымына улау процесінің маңызды әсерін көрсетеді.

Кеуекті кремний матрицасы мен толтырғышқа негізделген композициялық құрамның алынған үлгісі - гельді протон өткізгіш электролитті механикалық тұрақты құрылымдарды қалыптастыруға мүмкіндік береді. Электролитті кеуекті кремний матрицасының құрылымына капсулалау мембрананың механикалық беріктігін айтарлықтай арттырады, протон өткізгіш мембраналардағы протон баламасы (доноры) ретінде, сондай-ақ протикалық иондық сұйықтықтарды қолдану перспективаларын көрсетеді. Ылғал сіңірудің төмен мәндерінде өткізгіштік іс жүзінде тұрақты және төмен болып қалады. Ылғалдың сіңуі жоғарылаған сайын (20–30% - дан кейін) өткізгіштіктің айтарлықтай өсуі байқалады. Ылғал сіңірудің белгілі бір шегіне жеткенде (шамамен 80%) өткізгіштік тұрақтандырылады, бұл кеуекті материалдың сумен қанықтылығын көрсетеді, ал гель электролиті материалдың ылғалды ұстау қабілетін жақсартады, бұл белгілі бір ылғалдылық деңгейінде өткізгіштіктің жоғарылауына ықпал етеді.

Кеуек өлшемдерінің протон өткізгіштігіне әсерін талдау жүргізілді. 0,35–10 нм диапазонындағы кеуек өлшемдері кезінде өткізгіштік логарифмінің айтарлықтай өсуі байқалады, өткізгіштік шыңы 10 нм аймағында жетеді, кеуек мөлшері 50–200 нм ұлғайған кезде өткізгіштік біртіндеп төмендейді. Бұл тәуелділік протонның максималды өткізгіштігіне қол жеткізу үшін кеуек құрылымының және олардың оңтайлы мөлшерінің маңыздылығын көрсетеді.

Зерттелетін үлгінің барлық қасиеттерінің жиынтығы оның отын ұяшығының мембранасы ретінде пайдалануға мүмкіндігін анықтайды. Кремнийдегі саңылаулар өндіріс жағдайына байланысты өлшемдері әртүрлі болғандықтан, химиялық өңдеу түрі және қолданылатын кремний төсеніш түрінде байланысты, келешекте кеуектілігі жоғары және бетінің ауданы үлкен материалды жасау жоспарлануда, сондықтан осы мақсаттарға жету үшін материалды өңдеудің басқа әдістері қарастырылатын болады.

Алғыс

Жұмыс Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрлігі Ғылым комитетінің бағдарламалық-нысаналы қаржыландыруымен жүргізілді – BR21882200 «Сутегін алу, сақтау және электр энергиясын өндіру үшін инновациялық технология-ларды, материалдар мен құрылғыларды әзірлеу және зерттеу».

ПАЙДАЛАНЫЛҒАН ӘДЕБИЕТТЕР

1. Sivkov V.N., Lomov A.A., Vasil'ev A.L., Nekipelov S.V., Petrova O.V. X-ray and synchrotron studies of porous silicon // Published in Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov. – 2013. – Vol. 47. – No. 8. – P. 1048–1054.
2. Волошина Т.В., Заварицкая Т.Н., Кавецкая И.В., Караванский В.А., Ромашов Д. А. Формирование и фотолюминесцентные свойства пористого кремния, полученного в йодсодержащих электролитах // Журнал прикладной спектроскопии. – 2002. – Т. 69. – С. 238–241.
3. Korotcenkov G., Cho B. K. Porous Semiconductors: Advanced Material for Gas Sensor Applications // Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences. – 2010. – Vol. 35. – P. 1–37. <https://doi.org/10.1080/10408430903245369>
4. Foll H., Leisner M., Cojocar A., Carstensen J. Macroporous Semiconductors // Materials. – 2010. – Vol. 3. – P. 3006–3076. <https://doi.org/10.3390/ma3053006>
5. Воронцов А.С., Осминкина Л.А., Ткаченко А. Е., Константинова Е.А., Еленский В.Г., Тимошенко В.Ю., Кашкаров П.К. Модификация свойств пористого кремния при адсорбции молекул йода // Физика и техника полупроводников. 2007. – Т. 41 (8). – С. 972–976.
6. Chao Y. Optical Properties of Nanostructured Silicon // Comprehensive Nanoscience and Technology. – 2011. Vol. 1. – P. 543–570.
7. Boscherini F. X-ray absorption fine structure in the study of semiconductor heterostructures and nanostructures // Characterization of Semiconductor Heterostructures and Nanostructures. – 2008. – P. 289–330. <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-53099-8.00009>

8. Ломов А.А., Бушуев В.А., Карцев А.А., Караванский В.А., Васильев А.Л. Применение рентгеновских дифракционных методов для исследования микронных пористых слоев кремния // Кристаллография. – 2009. – Т. 54(3). – С. 410–417.
9. Barillaro G., Bruschi P., Diligenti A., Nannini A. Fabrication of regular silicon microstructures by photo-electrochemical etching of silicon // Physica Status Solidi (c). – 2005. – Vol. 2. – P. 3198–3202.
10. Старков В.В., Лысков Н.В., Добровольский Ю.А. Пористый кремний в портативных топливных элементах // Международный научный журнал «Альтернативная энергетика и экология». – 2009. – № 8 (76). – С. 78–84.
11. Астрова Е.В., Нечитайлов А.А., Забродский А.Г. Кремниевые технологии для микротопливных элементов // Альтернативная энергетика и экология. – 2007. – № 2. – С. 60–65.
12. Shao-zhong Zeng, Xierong Zeng, Lin Huang, Hongliang Wu, Yuechao Yao, Xian feng Zheng and Ji zhao Zou. The formation mechanisms of porous silicon prepared from dense silicon monoxide // RSC Advances. – 2017. – No. 13. – P. 7990–7995. <https://doi.org/10.1039/c6ra27929e>
13. Radin S., Chen T. and Ducheyne P. The Controlled Release of Drugs from Emulsified, Sol Gel Processed Silica Microspheres // Biomaterials. – 2008. – Vol. 30. – P. 850–858. <https://doi.org/10.1016/j.biomaterials.2008.09.066>
14. Zhang S., Lu X., Zhou Q., Li X., Zhang X., Li S. Ionic Liquids: Physicochemical Properties // Elsevier, 2009.
15. Bocharova V., Sokolov, A.P. Perspectives for polymer electrolytes: a view from fundamentals of ionic conductivity // Macromolecules. – 2020. – Vol. 53(11). – P. 4141–4157.
16. Yue K., Zhai C., Gu S., Yeo J., Zhou G. The effect of ionic liquid-based electrolytes for dendrite-inhibited and performance-boosted lithium metal batteries // Electrochimica Acta. – 2022. – Vol. 401. – P. 139527.
17. Добровольский Ю.А., Писарева А.В., Леонова Л.С., Карелин А.И. Новые протонпроводящие мембраны для топливных элементов и газовых сенсоров // Альтернативная энергетика и экология – ISJAE. – 2004. – № 12. – С. 36–41.
18. Wong C.Y., Wong W.Y., Loh K.S., Lim K.L. Protic ionic liquids as next-generation proton exchange membrane materials: Current status & future perspectives // Reactive and Functional Polymers. – 2022. – Vol. 171. – P. 105160.
19. Seng L.K., Masdar M.S., Shyuan L.K. Ionic Liquid in Phosphoric Acid-Doped Polybenzimidazole (PA-PBI) as Electrolyte Membranes for PEM Fuel Cells: A Review // Membranes. – 2021. – Vol. 11. – P. 728. <https://doi.org/10.3390/membranes11100728>
20. Elwan H.A., Mamlouk M., Scott K. A review of Proton Exchange Membranes Based on Protic Ionic Liquid/polymer blends for polymer electrolyte membrane fuel cells // Journal Power Sources. – 2021. – Vol. 484. – P. 229197.

REFERENCES

1. Sivkov V.N., Lomov A.A., Vasil'ev A.L., Nekipelov S.V., Petrova O.V. X-ray and synchrotron studies of porous silicon // Published in Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov. – 2013. – Vol. 47. – No. 8. – P. 1048–1054.
2. Voloshina T.B., Zavaritskaya T.N., Kavetskaya I.V., Karavanski V.A., Romashov D. A. Formirovanie i foto-

- lyuminestsentnye svoystva poristogo kremniya, poluchennogo v yodsoderzhashchikh elektrolitakh // Zhurnal prikladnoy spektroskopii. – 2002. – Vol. 69. – P. 238–241.
3. Korotcenkov G., Cho B. K. Porous Semiconductors: Advanced Material for Gas Sensor Applications // Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences. – 2010. – Vol. 35. – P. 1–37. <https://doi.org/10.1080/10408430903245369>
 4. Foll H., Leisner M., Cojocaru A., Carstensen J. Macroporous Semiconductors // Materials. – 2010. – Vol. 3. – P. 3006–3076. <https://doi.org/10.3390/ma3053006>
 5. Vorontsov A.S., Osminkina L.A., Tkachenko A. E., Konstantinova E.A., Elenskiy V.G., Timoshenko V.Yu., Kashkarov P.K. Modifikatsiya svoystv poristogo kremniya pri adsorbtsii molekul yoda // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 2007. – Vol. 41 (8). – P. 972–976.
 6. Chao Y. Optical Properties of Nanostructured Silicon // Comprehensive Nanoscience and Technology. – 2011. Vol. 1. – P. 543–570.
 7. Boscherini F. X-ray absorption fine structure in the study of semiconductor heterostructures and nanostructures // Characterization of Semiconductor Heterostructures and Nanostructures. – 2008. – P. 289–330. <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-53099-8.00009>
 8. Lomov A.A., Bushuev V.A., Kartsev A.A., Karavanskiy V.A., Vasil'ev A.L. Primenenie rentgenovskikh difraktsionnykh metodov dlya issledovaniya mikronnykh poristyykh sloev kremniya // Kristallografiya. – 2009. – Vol. 54(3). – P. 410–417.
 9. Barillaro G., Bruschi P., Diligenti A., Nannini A. Fabrication of regular silicon microstructures by photo-electrochemical etching of silicon // Physica Status Solidi (c). – 2005. – Vol. 2. – P. 3198–3202.
 10. Starkov V.V., Lyskov N.V., Dobrovol'skiy Yu.A. Poristyy kremniy v portativnykh toplivnykh elementakh // Mezhdunarodnyy nauchnyy zhurnal “Al'ternativnaya energetika i ekologiya”. – 2009. – No. 8 (76). – P.78–84.
 11. Astrova E.V., Nechitaylov A.A., Zabrodskiy A.G. Kremnievye tekhnologii dlya mikrotoplivnykh elementov // Al'ternativnaya energetika i ekologiya. – 2007. – No. 2. – P. 60–65.
 12. Shao-zhong Zeng, Xierong Zeng, Lin Huang, Hongliang Wu, Yuechao Yao, Xian feng Zheng and Ji zhao Zou. The formation mechanisms of porous silicon prepared from dense silicon monoxide // RSC Advances. – 2017. – No. 13. – P. 7990–7995. <https://doi.org/10.1039/c6ra27929e>
 13. Radin S., Chen T. and Ducheyne P. The Controlled Release of Drugs from Emulsified, Sol Gel Processed Silica Microspheres // Biomaterials. – 2008. – Vol. 30. – P. 850–858. <https://doi.org/10.1016/j.biomaterials.2008.09.066>
 14. Zhang S., Lu X., Zhou Q., Li X., Zhang X., Li S. Ionic Liquids: Physicochemical Properties // Elsevier, 2009.
 15. Bocharova V., Sokolov, A.P. Perspectives for polymer electrolytes: a view from fundamentals of ionic conductivity // Macromolecules. – 2020. – Vol. 53(11). – P. 4141–4157.
 16. Yue K., Zhai C., Gu S., Yeo J., Zhou G. The effect of ionic liquid-based electrolytes for dendrite-inhibited and performance-boosted lithium metal batteries // Electrochimica Acta. – 2022. – Vol. 401. – P. 139527.
 17. Dobrovol'skiy Yu.A., Pisareva A.V., Leonova L.S., Karelin A.I. Novye protonprovodyashchie membrany dlya toplivnykh elementov i gazovykh sensorov // Al'ternativnaya energetika i ekologiya – ISJAE. – 2004. – No. 12. – P. 36–41.
 18. Wong C.Y., Wong W.Y., Loh K.S., Lim K.L. Protic ionic liquids as next-generation proton exchange membrane materials: Current status & future perspectives // Reactive and Functional Polymers. – 2022. – Vol. 171. – P. 105160.
 19. Seng L.K., Masdar M.S., Shyuan L.K. Ionic Liquid in Phosphoric Acid-Doped Polybenzimidazole (PA-PBI) as Electrolyte Membranes for PEM Fuel Cells: A Review // Membranes. – 2021. – Vol. 11. – P. 728. <https://doi.org/10.3390/membranes11100728>
 20. Elwan H.A., Mamlouk M., Scott K. A review of Proton Exchange Membranes Based on Protic Ionic Liquid/polymer blends for polymer electrolyte membrane fuel cells // Journal Power Sources. – 2021. – Vol. 484. – P. 229197.

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОРИСТОГО КРЕМНИЯ В КАЧЕСТВЕ МЕМБРАНЫ ТОПЛИВНОГО ЭЛЕМЕНТА

**Скаков М. К.¹, Жилкашинова А. М.², Миниязов А. Ж.², Кантай Н.², Кыдырмолла А.²,
Кабдрахманова С.^{2*}, Мухамедова Н. М.¹, Жанболатова Г. К.¹**

¹ РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Курчатов, Казахстан

² Восточно-Казахстанский университет им. С. Аманжолова, Усть-Каменогорск, Казахстан

³ Центр технологических компетенций в сфере водородной энергетики РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

* E-mail для контактов: nurgan85@mail.ru

В статье отражены результаты исследования пористого кремния, в качестве мембраны для топливных элементов, где сам пористый кремний является матрицей, а гелевый протонпроводящий электролит является наполнителем. Проведены работы по химическому вытравливанию пор на исходных пластинах кремния. Сформированные структуры демонстрируют относительно равномерное распределение пор со смесью больших и малых пустот. Проведены исследования пористого Si методом адсорбционной порометрии. Общий объем пор и распределение по размерам определяли методом Барретта-Джойнера-Халенды (ВЖН) по кривые изотермы десорбции. Анализ распределения пор по объему показал, что данные сегментируются на микропоры (0,35–2 нм), мезопоры (2–10 нм) и большие поры (10–50 нм, 50–200 нм). Рентгенофазовый анализ показал, что существует значительная разница в межплоскостных расстояниях линий дифрактограммы. Также приведена зависимость протонной проводимости от образца пористого кремния от влагопоглощения.

Ключевые слова: топливный элемент, пористый кремний, структура, фаза, адсорбция.

STUDY OF POROUS SILICON AS A FUEL CELL MEMBRANE

Skakov M. K.¹, Zhilkashinova A. M.², Miniyazov A. Zh., Kantay N.², Kydyrmolla A.²,
Kabdrakhmanova S.^{2*}, Mukhamedova N. M.¹, Zhanbolatova G. K.³

¹⁾ RSE “National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan”, Kurchatov, Kazakhstan

²⁾ East Kazakhstan University named after S. Amanzholov, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan

³⁾ Center for Technological Competence in the Field of Hydrogen Energy RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

* E-mail for contacts: nurgan85@mail.ru

The article presents the results of a study of porous silicon as a membrane for fuel cells, where the porous silicon itself is the matrix and the gel proton-conducting electrolyte is the filler. Work was carried out on chemical etching of pores on the original silicon wafers. The formed structures demonstrate a relatively uniform distribution of pores with a mixture of large and small voids. Studies of porous Si were conducted using the adsorption porosimetry method. The total pore volume and size distribution were determined by the Barrett-Joyner-Halenda (BJH) method using the desorption isotherm curve. Analysis of the pore volume distribution showed that the data are segmented into micropores (0.35–2 nm), mesopores (2–10 nm) and large pores (10–50 nm, 50–200 nm). X-ray phase analysis has shown that there is a significant difference in the interplane distances of the diffractogram lines. The dependence of the proton conductivity of a porous silicon sample on moisture absorption is also shown.

Keywords: fuel cell, porous silicon, structure, phase, adsorption.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-79-87>

УДК 574.52

TO THE QUESTION ABOUT THE CURRENT STATE AND PROBLEMS OF FORMATION OF INVASIVE ICHTHYOFAUNA OF THE MIDDLE IRTYSH BASIN

A. V. Ubaskin¹, K. K. Akhmetov¹, V. P. Kolpakova², Z. K. Shaimardanov², S. Z. Arynova^{1*}, G. S. Azhaev¹

¹⁾ *Toraigyrov University, Pavlodar, Kazakhstan*

²⁾ *D. Serikbayev East Kazakhstan technical university, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan*

* E-mail для контактов: shinar_uzh@mail.ru

The article presents new data on biology and ecology of invasive ichthyofauna of the Middle Irtysh basin on the territory of Pavlodar region. Using the literature data, the species composition of alien species inhabiting the upper, middle and lower reaches of the Irtysh River is summarized. In the Middle Irtysh basin, 15 invasive fish species belonging to 5 families and 13 genera are currently registered. The largest number of species belong to the carp family (9 species or 60%), salmonids include 3 species or 20%, other families are represented by one species. Only three species have acclimatized and entered the fishery in the Middle Irtysh basin: bream, carp (carp) and pikeperch. The share in commercial catches is from 15.7 to 27.7% for bream, from 0.2 to 1.5% for carp and from 0.8 to 1.3% for pikeperch. The largest number of caught bream individuals was registered in backwaters, carp in channels and lakes, pikeperch in Irtysh channels. The data on growth rate of these three fish species with the results of regression analysis are given. Data on the results of introduction of 11 more fish species are briefly summarized. It is concluded that spontaneous introductions sometimes lead to complete reorganization of biocenosis as a result of introduction of predator or food competitor, transfer of dangerous parasites or diseases. Most often, after a small "acclimatization effect" a water body not ready for the press of an introduced species becomes impoverished and becomes unattractive for fishermen and unpromising for commercial fish farming. Given that the problem of alien fish species is a serious environmental problem, its solution requires a comprehensive approach including scientific research, monitoring, management and educational programs.

Keywords: *Irtysh River, ichthyofauna, invasion, fish introduction, bioproductivity.*

INTRODUCTION

Large-scale activities on introduction of new fish species in the Irtysh river basin in order to increase the bioproductive potential of the region began in the last century and continue up to the present time. Unfortunately, together with valuable fish species, non-target fish species have entered the Irtysh basin, and their expansion into new water bodies has taken significant proportions.

The issue of increasing the bioproductive potential of water bodies through the introduction of new fish species is complex and multifaceted. It affects ecological, economic and social aspects of water resources management. It is important to realize that the introduction of introduced fish species can have both positive and negative consequences for the ecosystem of a water body. Undoubtedly, there are positive aspects such as increasing fish biomass, developing the local market (creating new jobs and improving the economic situation in the region), and attracting tourists. However, there are also negative aspects: alteration of the food chain (introduction of alien species may disrupt the natural food chain, leading to a decrease in the number of native fish species and other animals), pollution of water bodies (some fish species may negatively affect water quality, e.g. through the release of organic matter or through the accumulation of parasites), economic risks (may lead to unexpected economic losses if they start competing with native species for resources or if the consumption of these fish species does not increase), and economic risks (may lead to unexpected economic losses if they start competing with

native species for resources or if the consumption of these fish species does not increase).

Therefore, it is very important to develop and implement management measures for these activities: ecological impact assessment (before introducing a new species, a thorough assessment of its potential impact on the environment should be carried out), monitoring (after the introduction of a new species, the condition of the water body and fish population should be regularly monitored), population management (population control measures may be applied to control the numbers of the introduced species to avoid negative impacts on the ecosystem), education and information (it is necessary to inform).

It is important to approach the issue of increasing the bioproductive potential of water bodies using invasive fish species taking into account all these aspects and in order to minimize the negative impact on the environment.

In the present report new data on biology and ecology of invasive ichthyofauna of the Middle Irtysh basin (on the territory of Pavlodar region) are given, which will serve as a basis for understanding the nature of invasive processes of fishes, analyzing the nature of relationships between aboriginal fishes and omnivores, estimation of productive possibilities of omnivores when used in fishery, aquaculture and nature protection activity.

MATERIAL AND METHODS OF RESEARCH

The collection of field material was carried out at different times from spring to autumn in the fisheries reservoirs of the Middle Irtysh basin in the Pavlodar region,

assigned to nature users and fish producers. Fish were caught with their own set nets, and fish caught by fishermen with set nets, seines and traps, and fish caught by amateur fishermen were also examined. Mass measurements of the entire fish catch were carried out and individual specimens were selected, which were subjected to biological analysis in fresh form on the spot. First of all, the species belonging of the caught specimens was determined. The length of the fish's body was measured from the snout to the end of the scale cover using a measuring board. The fish was weighed on a cup scale or digital electronic scales. The total weight of the fish and the weight without entrails were measured. During dissection and external examination, the sex of the individuals and the maturity stage of the reproductive products were determined. The results were recorded in special ichthyological journals. To determine the age of the fish, scales were collected, as a rule, under the dorsal fin above the lateral line [1]. The scales were placed in special scale books. Gill covers were additionally selected from walleye and perch. The calculation of annual rings was carried out in the laboratory under a binocular microscope. Material processing was carried out according to generally accepted ichthyologic guidelines [1]. Statistical processing of the data was performed using Excel software package Microsoft®Office 2010, STATISTICA 13.3.0.

Certain biological and statistical material was obtained during the period of the first author's participation in commissions on stocking the floodplain reservoirs of the Irtysh with young valuable fish species. Data on species composition and fish production values were collected from informative and statistical sources (reports, publications) of various government agencies. General scientific (analysis, synthesis, comparison, generalization) research methods were used in writing the work.

RESULTS AND DISCUSSION

Ichthyofauna of the Irtysh River includes 43 fish species, among which 28 species are indigenous and 15 are introduced. Due to the fact that in the Irtysh basin there are different ecotopes with specific conditions of fish habitat, the species diversity is somewhat different. Analyzing the results of our own research and available publications on ichthyofauna of the Irtysh we grouped its species composition by three sections of the Irtysh: upper, middle and lower (Table 1).

The list of invasive species contains 15 species belonging to 5 families and 13 genera. The largest number of species belong to the carp family (9 species or 60 %), salmonids include 3 species or 20 %, other families are represented by one species.

Table 1. Distribution of alien fish species in different reaches of the Irtysh river flow

Family, species	Upstream ¹	Middle course ²	Lower reaches ³
Family Surpinidae Bonaparte, Carpiidae			
<i>Ctenopharyngodon idella</i> Valenciennes, 1844 / White Cupid	+	+	–
<i>Hypophthalmichthys molitrix</i> Valenciennes, 1844 / White-finned fathead minnows	+	+	+
<i>Hypophthalmichthys nobilis</i> Richardson, 1845 / Speckled fathead minnow	+	–	–
<i>Carassius auratus</i> Linnaeus, 1758 / Chinese Carp	+	?	–
<i>Cyprinus carpio</i> Linnaeus, 1758 / Carp (carp)	+	+	+
<i>Abramis brama</i> Linnaeus, 1758 / Bream	+	+	+
<i>Leucaspis delineatus</i> , Heckel, 1843) Common Verkhovka		+	+
<i>Pseudorasbora parva</i> Temminck & Schlegel, 1846 / Amur tadpole	+	?	+
<i>Alburnus alburnus alburnus alburnus</i> Linnaeus, 1758 / Walleye	+	+	–
Family Salmonidae G. Cuvier, Salmonids			
<i>Coregonus ladogae</i> Pravdin, Golubev & Belyaeva, 1938 / <i>Coregonus ladogae</i> Pravdin, Golubev & Belyaeva, 1938 / Ladoga Ripus	+	–	–
<i>Coregonus peled</i> Gmelin, 1789 / Peljat	+	?	+
<i>Oncorhynchus mykiss</i> Walbaum, 1792 / Rainbow trout	+	–	–
Family Percidae Cuvier, Percidaceae			
<i>Sander lucioperca</i> Linnaeus, 1758 / Sudak	+	+	+
Family Gobiidae Bullfishes			
<i>Proterorhinus marmoratus</i> Smitt, 1900/ Bullhead tzatziki	–	–	+
Family (Eleotrididae) Cephalopods			
<i>Perccottus glenii</i> Dybowski / Cephalopod mole 1877)	–	+	+

Note: ¹ – [2]; ² – our data; ³ – [3]; * – territory of Pavlodar region; ? – the species has not been found in recent years.

Only three species have acclimatized and entered the fishery in the Middle Irtysh basin: bream, carp and pikeperch. The bream has the highest abundance and wide distribution in this section of the Irtysh (Table 2). Its share in catches ranges from 15.7 to 27.7%. The share of carp varies by years from 0.2 to 1.5%, pikeperch – from 0.8 to 1.3 %. There is a tendency for the share of bream in catches to decrease over the years and a slight increase for carp.

Acclimatizants are found in all sections of the Irtysh, but their specific confinement to a certain ecotope in the Irtysh ecosystem was revealed during the research. Thus, the highest number of bream caught was registered in the river backwaters and less in the channels, carp in the channels and lakes, and pikeperch in the channels (Table 3).

Bream. This species has been known in the Middle Irtysh basin since the 30s of the last century. In Lake Zaisan, in Bukhtarma and Ust-Kamenogorsk reservoirs bream was introduced in 1959–1964. In Bukhtarma

reservoir bream is spread throughout its water area and in all biotopes. In the reservoirs of the Irtysh basin it is one of the highly abundant fish species. At present, the Bukhtarma Reservoir is a “bream” reservoir, as bream make up 80–85% of the fish population. In the Shulba reservoir and Ust-Kamenogorsk reservoirs bream has also become a dominant species (at the level of 30–40% of the total fish production) [2]. In the Irtysh River within the Omsk region, acclimatizants appeared in the fishery statistics since the 60s, and at present their share in catches is also quite high and amounts to about 27%. [4, 5].

In the Middle Irtysh in Pavlodar region, bream of both sexes aged 2+ to 8+ years were encountered in catches. It had an average body length of 21 cm (11.0–33.0) and an average body weight of 223 g (25–750) (Table 4). Comparative analysis of linear growth (Table 5) showed that bream from the Middle Irtysh River was inferior to bream from many water bodies in terms of growth rate, which is most likely due to both the high abundance of the species and the influence of anthropogenic factor.

Table 2. Share of invasive fish species in total catch from the Irtysh River, %

Type of fish	Years								
	2014	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	2023
bream	27.7	23.4	17.4	20.2	21.3	21.2	18.8	16.3	15.7
Carp	0.5	0.3	0.2	0.7	0.8	1.5	0.8	0.8	0.9
Sudak	1.3	0.9	0.8	1.0	1.1	1.3	1.3	0.9	1.1

Table 3. Share of fish species in commercial catches in the Irtysh channels, backwaters and lakes

Type of fish	Share of fish, %		
	ducts	backwaters	lakes
bream	18.5	47.9	24.7
Carp	6.6	2.2	5.7
Sudak	5.8	3.1	1.3

Table 4. Linear and weight growth of bream in the Irtysh River (Pavlodar region) (n=45)

Parameters		Age, years								
		2+	3+	4+	5+	6+	7+	8+	9+	10+
length, cm	average	11.5	14.2	17.6	20.3	23.3	26.8	30.5	–	32.3
	limits	11.0–12.0	13.0–15.3	16.0–18.5	18.5–21.0	22.0–24.0	25.0–29.0	30.0–31.1	–	31.5–33.0
weight, g	average	32	64	122	180	264	423	628	–	733
	limits	25–40	45–79	95–140	147–205	226–305	320–535	610–645	–	715–750
n		4	8	9	8	6	5	3	–	2

Table 5. Linear growth of bream in different water bodies (based on observations)

Water body	Age, years										Author
	1+	2+	3+	4+	5+	6+	7+	8+	9+	10+	
Irtysh River RK	–	11.5	14.2	17.6	20.3	23.3	26.8	30.5	–	32.3	our data
Balkhash Lake	7.9	13.5	19.1	21.6	23.0	25.1	27.0	–	–	–	[6]
Kapchagai reservoir	–	–	18.0	24.5	26.8	28.9	29.9	–	–	–	[6]
Ili River	7.7	11.1	15.6	20.1	21.6	–	–	–	–	–	[6]
Ural River	8.9	13.8	20.5	23.9	27.3	30.2	33.4	–	–	–	[6]
Bukhtarma reservoir	9.6	16.2	19.0	23.6	27.1	29.1	32.4	37.3	39.9	–	[6]
Irtysh-Karaganda Canal	12.0	20.5	24.9	30.5	36.0	–	–	–	–	–	[6]
Yesil River	12.3	14.8	17.1	19.5	22.9	26.8	29.1	29.5	–	–	[7]

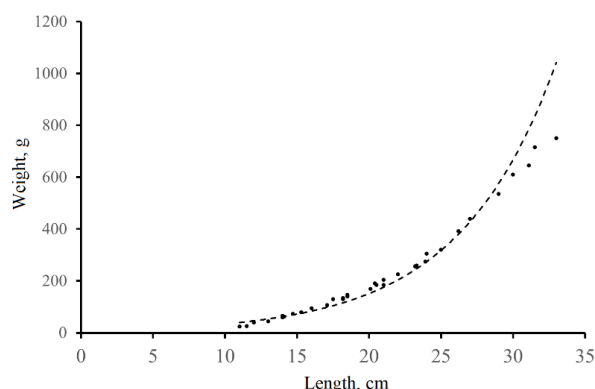


Figure 1. Relationship between bream mass and body length
($y = 7.7736e^{0.1484x}$)

The curve reflecting the relationship between bream mass and body length is shown in Fig. 1. The scatter of points in each range of body length is small, which allowed us to testify to the determinism of these indicators. A statistical regression line with the equation: $y = 7.7736e^{0.1484x}$ was obtained. This equation can be used for modeling the process of bream mass accumulation, searching for missing calculated indicators.

Carp (carp). Carp settlement in the basin occurred after the introduction of carp into Lake Zaisan and reservoirs in the 1930s, self-dispersal of carp from pond farms and cage farms (including purebred lines of German, Cherepetsk, Kazakh and Sarboyan carp). Fishery statistics began to register carp in the Middle Irtysh basin in the mid-70s (in 1976 – 0.5 tons). It has not yet been recorded in the 1978 control catches. At present, despite numerous measures on stocking of the Irtysh, it occupies only from 0.2 to 1.5% in commercial catches (Table 2). In catches of the Irtysh, downstream (Omsk region), this species is not taken into account, which does not allow to analyze the course of the naturalization process of this species in the region [4].

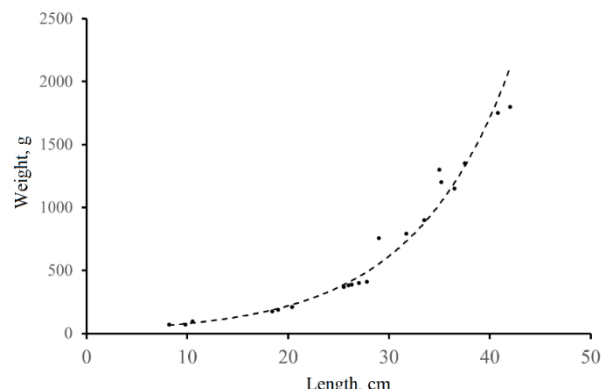


Figure 2. Relationship of carp body mass and length
($y = 27.999e^{0.1029x}$)

Due to the fact that only different breeds of carp were released into the reservoirs of the Middle Irtysh and only carp individuals were encountered in the control and commercial ones, we further describe the characteristics of carp rather than carp.

In catches from the Irtysh River (Pavlodar region), carps of both sexes aged 1+ to 6+ years were encountered. They had an average body length of 27.0 (8.2–42.0) cm and an average body mass of 688 (69–1800) g (Table 6). Comparative analysis of linear growth (Table 7) showed that carp from the Middle Irtysh were inferior to carp from water bodies of the south of Western Siberia (territory of the Russian Federation), but not inferior in growth to carp from water bodies of central and southern regions of Kazakhstan (Table 7).

The curve showing the relationship between carp mass and body length is shown in Fig. 2. The spread of points in each range of body length is small, which allowed us to obtain the regression line in the form: $y = 27.999e^{0.1029x}$. This equation can be used for modeling the process of carp mass accumulation, searching for missing calculation indicators.

Table 6. Linear and weight growth of carp in the Irtysh River (Pavlodar Oblast)

Parameters		Age, years					
		1+	2+	3+	4+	5+	6+
length, cm	average	9.0	17.1	26.5	31.4	36.1	41.4
	limits	8.2–9.8	10.5–20.4	25.5–27.0	29.0–33.5	35.0–37.5	40.8–42.0
weight, g	average	70	167	390	815	1250	1775
	limits	69–71	96–211	370–410	755–900	1150–1350	1750–1800
n		2	4	5	3	4	2

Table 7. Linear growth of carp in different water bodies (based on observations)

Water body	Age, years						Author
	1+	2+	3+	4+	5+	6+	
Irtysh River RK	9.0	17.1	26.5	31.4	36.1	41.4	our data
Ob River	–	–	34.4	39.3	44.5	49.5	[8]
Burlin Lakes	–	–	35.4	38.2	42.3	44.0	[8]
Chardara reservoir	13.4	19.8	26.6	32.3	36.0	40.1	[9]
Alakol Lake	12.2	23.5	25.4	27.3	29.7	33.7	[9]

**TO THE QUESTION ABOUT THE CURRENT STATE AND PROBLEMS OF FORMATION
OF INVASIVE ICHTHYOFAUNA OF THE MIDDLE IRTYSH BASIN**

Table 8. Linear and weight growth of pikeperch in the Irtysh River (Pavlodar region)

Parameters		Age, years					
		1+	2+	3+	4+	5+	6+
length, cm	average	19.0	20.4	28.8	40.4	44.6	46.3
	limits	17.0–21.1	18.2–23.0	26.1–31.0	38.2–42.1	39.9–51.0	–
weight, g	average	84	93	260	866	1399	1422
	limits	85–88	90–95	215–390	830–910	1002–1600	–
n		3	4	6	4	3	1

Table 9. Linear growth of pikeperch in different water bodies (based on observation data)

Water body	Age, years									Author
	1+	2+	3+	4+	5+	6+	7+	8+	9+	
Irtysh River RK	19.0	20.4	28.8	40.4	44.6	46.3	–	–	–	our data
Bukhtarma reservoir	13.2	22.8	32.2	41.6	51.8	58.9	64.9	68.5	–	[9]
Ural River	19.8	27.9	35.4	41.5	47.9	–	57.3	–	–	[9]
Kapchagai reservoir	16.0	23.5	36.8	40.5	48.0	58.3	59.7	63.7	70.3	[9]
Middle Irtysh RF	–	31.5	35.6	40.5	42.6	44.0	–	–	–	[10]

Pikeperch. Acclimatization in the Irtysh basin began in 1958, when about 1300 specimens of pikeperch from the lower reaches of the Syr Darya were released into the Ust-Kamenogorsk reservoir. In Bukhtarma reservoir from 1959 to 1966 more than 16 thousand specimens were released, mainly from the lower reaches of the Ural, but also from Lake Biylikol (about 4 thousand specimens) and from the Aral Sea. Already in the first years after the introduction of pikeperch from reservoirs and its spreading down the Irtysh was noted. [2]. This species in the region is noted in the statistics of fishing since 1978, the average catch in the Irtysh River is 2.4 tons (11.1% of the total catch) [4]. In the Omsk region, the first specimens were caught in the Irtysh River in 1962, where it is still found in its tributaries and floodplain reservoirs [5].

In catches from the Irtysh River (Pavlodar region), pikeperch of both sexes aged 1+ to 6+ years were encountered. They had an average body length of 31.4 cm and an average body mass of 544 g (Table 8). Comparative analysis of linear growth (Table 9) showed that pikeperch from the Middle Irtysh are not inferior to those from other water bodies of Kazakhstan and the Russian Federation.

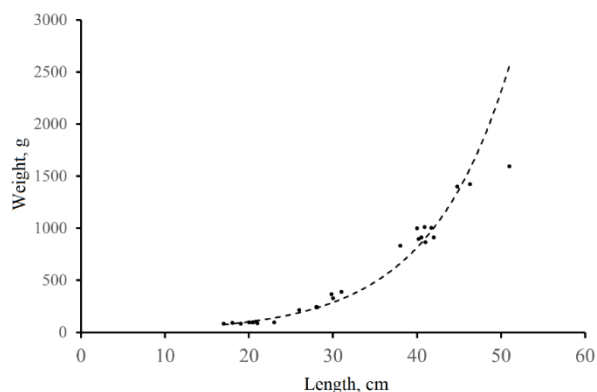


Figure 3. Relationship between pikeperch mass and body length ($y = 12.589e^{0.1043x}$)

The curve showing the relationship between the mass and body length of pikeperch is shown in Fig. 3. The scatter of points in each body length range is small, which allowed us to testify to a close correlation between these indices. Pikeperch growth is close to isometric and is described by the equation $y = 12.589e^{0.1043x}$. This equation can be used for modeling the process of bream mass accumulation, searching for missing calculation indices.

As we have already noted earlier [11], of particular concern is the introduction of Russian sturgeon into the Irtysh River from the cage warm-water farm of the Aksuk SDPP located in the Stary Irtysh channel. As a result of non-compliance with the technological process and poor organization of work during 2011–2013, a large number of young sturgeon of different ages (larvae, seven-year olds, two-year olds) were released from the hatchery and cage farm into the Irtysh River. Considering the age of maturation of the Russian sturgeon is 8–10 years, spawning of this alien species on spawning grounds, the original breeding grounds of the Siberian sturgeon, is possible already at the end of the second decade. There is a high probability of the appearance of hybrids of these two species and the emergence of an ecological catastrophe.

Fish of the Amur complex: white amur, white and mottled fathead minnows. Since 2000, the stocking of juvenile white amur in Lake Zaisan and the Bukhtarma reservoir has been repeatedly carried out. Stocking with juvenile white carp was carried out as early as in the 80s of the last century. After their introduction into these reservoirs, apparently, some individuals have penetrated into the reservoirs of the middle part of the river, where they are occasionally caught by amateur fishermen. Periodically, the spring passage of white thickhead along the main channel of the Irtysh is registered. Despite stocking for several years, natural reproduction of these species has not been noted [2]. In the Irtysh River within the Omsk region there are also single cases of white amur capture [4].

Chinese crucian carp. In the basin of the upper Irtysh is a commercial species, an object of recreational fishing [2]. Finding of Chinese crucian carp as an independent species in water bodies of Pavlodar Priirtyshye has not been registered yet. Probably, it lives in water bodies of the basin together with other indigenous species of crucian carp. It is necessary to conduct scientific research using special methods of morphometric features and molecular-genetic analysis.

Common Verkhovka. In the reservoirs of the Middle Irtysh both on the Kazakhstan territory and downstream, it has mastered the niche of phyto- and zooplanktophage of shallow littoral of the river channel part of the river and its tributaries, as well as of the floodplain. It is a trophic competitor of juveniles of native species and at the same time a food object of predatory fish [5].

Amur tetra. It is a non-numerous alien species in the Irtysh basin, which arrived together with planting material of carp and white amur [2]. Since Chebachek is registered both in the upper and lower reaches of the Irtysh, it is highly probable that it inhabits the waters of the Middle Irtysh as well. It is considered to be a weedy species, competes in feeding with commercial fish, eats fish eggs and larvae.

Ukleya. Widely distributed in the Irtysh River of the Kazakh territory since the beginning of the present century. Its numbers are increasing and with simultaneous expansion of habitats. This is facilitated by the presence in the Irtysh basin of numerous areas of well-warmed littorals with zooplanktonic organisms. The eel itself is an available food for both native predators (pike, perch) and alien predators (pikeperch). Object of recreational fishing. In the Irtysh River within the Omsk Oblast there is also an increase in the number of this species [4].

Ripus ladoga and pelad. Population of whitefish (eggs and larvae) in water bodies of the upper Irtysh resulted in formation of commercial herd of ripus and small herd of pelada. In recent years, there is no information on the occurrence of these species in the Kazakh territory of the Middle Irtysh. However, in the Irtysh of the Omsk region pelada are found in small numbers [5].

Rainbow trout. In the Upper Irtysh basin, stocking with yearlings (10 thousand rainbow trout) was carried out, but this species was not acclimatized [2]. This species was not found in the Middle Irtysh basin.

Headed mole-rota. In the basin of the Middle Irtysh of the Kazakhstani territory began to be observed in recent years and immediately attracted the attention of both amateur fishermen and ecologists. This species is very ecologically plastic. As an overgrown benthic form, has a higher number and biomass on characteristic biotopes. By type of feeding rota and predator and benthophagous among thickets of macrophytes. The presence of rota reduces the abundance of roach and spruce grouse, as it competes strongly with them for food resources. The greatest danger is the eating of eggs of other species breeding in coastal shallows by rota. A negative correlation was found between the presence of rotas in water

bodies and the diversity of invertebrate species – potential predators for amphibians ($r = -0.552$). In water bodies inhabited by rota, adult beetles of the family Dytiscidae and their larvae were absent or rare. Dytiscidae and their larvae, beetles Hydrous sp., larvae of dragonflies *Aeschna cyanea*, *Somatochlora aenea* and *Erythromma viridulum*, spiders Dolomedes sp., leeches *Haemopsis sanguisugaii* [12]. To some extent, the “pressure” of rota on the level of reproduction of dragonflies can negatively affect the results of measures to suppress the number of bites.

In November 2013, fishermen caught one fish specimen in the Irtysh River in Pavlodar region, which was identified as *Colossoma macropomum* (Cuvier, 1818) – brown pacu. The caught fish had a body length of 29 cm and a weight of 2.2 kg.

Amateur fishermen gave us a skull of a fish caught in the Irtysh, which belonged to the Amur catfish (*Parasilurus asotus* (Linnaeus, 1758)).

CONCLUSION

The species composition of alien species inhabiting the upper, middle and lower reaches of the Irtysh River is summarized using literature data. In the basin of the Middle Irtysh, in the territory of the conducted research, 15 invasive fish species belonging to 5 families and 13 genera are currently registered. The largest number of species belong to the carp family (9 species or 60%), salmonids include 3 species or 20%, other families are represented by one species. Only three species have acclimatized and entered the fishery in the Middle Irtysh basin: bream, carp (carp) and pikeperch. The share in commercial catches is from 15.7 to 27.7% for bream, from 0.2 to 1.5% for carp, and from 0.8 to 1.3% for pikeperch.

In general, the results of the studies suggest that some invasive species, acclimatized in the Irtysh River, will develop new water bodies, including those outside the Zaisan-Irtysh basin, in particular along the channel named after K.K. Gubkin. K. Satpayev channel.

According to the Fishery Rules, measures on introduction (introduction) and acclimatization of new species can be carried out only in accordance with approved biological justifications. Illegal introduction, even with good intentions, is criminal. Hundreds of water bodies in the Irtysh basin have been and are subjected to various kinds of fish transplants. The composition of the transplants is diverse and depends on imagination and possibilities of the transporter. But, as a rule, they are perch, crucian carp, carp and pike. Spontaneous introductions sometimes lead to a complete restructuring of the biocenosis as a result of introduction of a predator or food competitor, transfer of dangerous parasites or diseases. Most often, after a small “acclimatization effect” (increase in catches and growth rate of the alien) the water body not ready for the “alien onslaught” becomes impoverished and unattractive for fishermen and unpromising for commercial fish farming.

Given that the problem of alien fish species is a serious ecological problem, solving it requires a comprehensive approach that includes research, monitoring, management and education programs.

The first step should be to conduct thorough monitoring and research to determine the prevalence of invasive fish species in a particular region. This will help to understand the extent of the problem and to select the most effective control methods.

Regular monitoring of invasive species populations using a variety of methods including trawl surveys, photofixation, and molecular identification.

Conduct aquatic-bio-ecological studies to examine the behavior, feeding, and reproductive strategies of invasive species, which can help develop more targeted control measures.

Once enough information has been gathered on the distribution and impact of invasive species, population management plans can be developed and implemented.

The use of natural enemies or diseases to control populations of invasive species. For example, introducing specialized parasites or viruses that will not harm the environment or other species.

Catch fish using special licenses and restrictions on their sale or disposal. This may be a temporary solution but requires continuous monitoring.

Develop and adopt laws and regulations to prevent further introduction of invasive species and regulate their populations.

An important aspect of addressing invasive species is educating the public about the risks associated with these species and how to control them.

Develop and conduct educational programs for schools, universities, and the general public to raise awareness of the invasive species problem and the importance of addressing it.

Include local communities in the problem-solving process by providing them with the tools and knowledge to participate in monitoring and managing invasive species populations.

Develop predictive models to assess the potential spread of invasive species and the effectiveness of applicable management measures.

Continually adapting management strategies in response to changes in invasive species populations and new challenges.

Addressing the problem of invasive fish species is a long-term process that requires coordinated efforts between the scientific community, governments and the public. The key is to realize that successful solutions to this problem can only be achieved through an integrated approach that combines scientific research, legislative measures and active public participation.

The work was carried out within the framework of the IRN Project BR 21881921 "Assessment of the aquatic ecosystem of the Yertis River basin under conditions of industrial development and global processes" with the

financial support of the Science Committee of the Ministry of Science and Higher Education of the Republic of Kazakhstan.

REFERENCES

1. Правдин И.Ф. Руководство по изучению рыб (преимущественно пресноводных). – М.: Пищевая промышленность, 1966. – 267 с.
2. Евсеева А.А., Болботов Г.А., Кириченко О.И. Аннотированный список рыбообразных и рыб водоемов и водотоков бассейна верхнего Иртыша Восточного Казахстана с комментариями по их таксономии и зоогеографии // Acta Biologica Sibirica. – 2019. – № 5(4). – С. 156–174. <https://doi.org/10.14258/abs.v5.i4.7180>
3. Чемагин А.А. Рыбное население и его биотопическое распределение в бассейне Нижнего Иртыша // Современные проблемы науки и образования. – 2015. – № 2–1. – С. 1–6. URI: <https://www.science-education.ru/ru/article/view?id=21225>
4. Интересова Е.А., Ростовцев А.А., Егоров Е.В., Зайцев В.Ф., Визер А.М. Промысловое значение чужеродных видов рыб в водоемах юга Западной Сибири // Вестник рыбохозяйственной науки. – 2017. – Т. 4. – № 2 (14). – С. 37–44.
5. Корзун А.С., Кассал Б.Ю. Распределение чужеродных видов рыб в водоемах Омской области // Российский Журнал Биологических Инвазий. – 2012. – № 4. – С. 57–65.
6. Рыбы Казахстана: В 5-ти т. / В. П. Митрофанов, Г.М. Дукравец, В.А. Мельников, А.А. Баимбетов и др. – Алма-Ата: Наука. – 1988. – Т. 3. – 303 с.
7. Куржыкаев Ж., Асылбекова А.С., Баринаева Г.К. Ихтиофауна реки Есиль // Вестник науки Казахского агротехнического университета им. С. Сейфуллина. – 2020. – №1(104) – С. 17–28.
8. Водоемы Алтайского края: биологическая продуктивность и перспективы использования / отв. ред. В.П. Соловов. – Новосибирск: Наука, 1999. – С. 295
9. Рыбы Казахстана: В 5-ти т. / В.П. Митрофанов, Г.М., Дукравец и др. – Алма-Ата: Наука. – 1989. – Т. 4. – 312 с.
10. Михайлов А.И., Балацкий П.С., Зайцев В.Ф., Шаруха Ю.В., Визер Л.С. Сравнение размерно-возрастных характеристик судака (*Sander lucioperca*) р. Иртыш и оз. Салтаим-тенис // Водные и экологические проблемы Сибири и Центральной Азии. – Барнаул, 2022. – 2. – С. 297–299.
11. Убаськин А.В., Калиева А.Б., Биткеева А.А., Дюсембаева А.Т. Материалы к созданию «Черной книги фауны Павлодарской области». Чужеродные виды рыб в экосистемах Среднего Иртыша // Вестник Карагандинского университета. Серия Биология. Медицина. География. – 2019. – №4(96). – С. 57–62. URI: <http://rep.ksu.kz/handle/data/9496>
12. Решетников А.Н. Влияние интродуцированной рыбы ротана *Perccottus glenii* (Odontobutidae, Pisces) на земноводных в малых водоемах Подмосковья // Журнал общей биологии. – 2001. – 62(4). – С. 352–361.

REFERENCES (TRANSLITERATION)

1. Pravdin I.F. Rukovodstvo po izucheniyu ryb (preimushchestvenno presnovodnykh). – Moscow: Pishchevaya promyshlennost'. – 1966. – 267 p.
2. Evseeva A.A., Bolbotov G.A., Kirichenko O.I. Annotirovannyi spisok ryboobraznykh i ryb vodoemov i vodotokov basseyna verkhnego Irtysha Vostochnogo Kazakhstana s kommentariyami po ikh taksonomii i zoogeografii // Acta Biologica Sibirica. – 2019. – No. 5(4). – P. 156–174.
<https://doi.org/10.14258/abs.v5.i4.7180>
3. Chemagin A.A. Rybnoe naselenie i ego biotopicheskoe raspredelenie v basseyne Nizhnego Irtysha [Fish population and its distribution in the Lower Irtysh basin] // Sovremennye problemy nauki i obrazovaniya. – 2015. – No. 2–1. – P. 1–6. URI: <https://www.science-education.ru/ru/article/view?id=21225>
4. Interesova E.A., Rostovtsev A.A., Egorov E.V., Zaytsev V.F., Vizer A.M. Promyslovoye znachenie chuzherodnykh vidov ryb v vodoemakh yuga Zapadnoy Sibiri // Vestnik rybokhozyaystvennoy nauki. – 2017. – Vol. 4. – No. 2 (14). – P. 37–44.
5. Korzun A.S., Kassal B.Yu. Raspredelenie chuzherodnykh vidov ryb v vodoemakh Omskoy oblasti // Rossiyskiy Zhurnal Biologicheskikh Invaziy. – 2012. – No. 4. – P. 57–65.
6. Ryby Kazakhstana: V 5-ti t. / V. P. Mitrofanov, G.M. Dukravets, V.A. Mel'nikov, A.A. Baimbetov i dr. – Alma-Ata: Nauka. – 1988. – Vol. 3. – 303 p.
7. Kurzhykaev Zh., Asylbekova A.S., Barinova G.K. Ikhtiofauna reki Esil' // Vestnik nauki Kazakhskogo agrotekhnicheskogo universiteta im. S. Seyfullina. – 2020. – No. 1(104) – P. 17–28.
8. Vodoemy Altayskogo kraya: biologicheskaya produktivnost' i perspektivy ispol'zovaniya / otv. red. V.P. Solovov. – Novosibirsk: Nauka. – 1999. – P. 295
9. Ryby Kazakhstana: V 5-ti t. / V.P. Mitrofanov, G.M., Dukravets i dr. – Alma-Ata: Nauka. – 1989. – Vol. 4. – 312 p.
10. Mikhaylov A.I., Balatskiy P.S., Zaytsev V.F., Sharukha Yu.V., Vizer L.S. Sravnenie razmerno-vozrastnykh kharakteristik sudaka (Sander lucioperca) r. Irtysh i oz. Saltaim-tenis // Vodnye i ekologicheskie problemy Sibiri i Tsentral'noy Azii. – Barnaul. – 2022. – Vol. 2. – P. 297–299.
11. Ubas'kin A.V., Kalieva A.B., Bitkeeva A.A., Dyusembaeva A.T. Materialy k sozdaniyu "Chernoy knigi fauny Pavlodarskoy oblasti". Chuzherodnye vidy ryb v ekosistemakh Srednego Irtysha // Vestnik Karagandinskogo universiteta. Seriya Biologiya. Meditsina. Geografiya. – 2019. – No. 4(96). – P. 57–62. URI: <http://rep.ksu.kz/handle/data/9496>
12. Reshetnikov A.N. Vliyanie introdutsirovannoy ryby rotana Percottus glenii (Odontobutidae, Pisces) na zemnovodnykh v malykh vodoemakh Podmoskov'ya // Zhurnal obshchey biologii. – 2001. – Vol. 62(4). – P. 352–361.

ОРТА ЕРТИС БАССЕЙНІНІҢ ИНВАЗИЯЛЫҚ ИХТИОФАУНАСЫНЫҢ ҚАЛЫПТАСУЫНЫҢ
ҚАЗІРГІ ЖАҒДАЙЫ МЕН ПРОБЛЕМАЛАРЫ ТУРАЛЫ МӘСЕЛЕГЕ

А. В. Убаскин¹, К. К. Ахметов¹, В. П. Колпакова², Ж. К. Шаймарданов², Ш. Ж. Арынова^{1*}, Г. С. Ажаев¹

¹⁾ *Торайгыров университеті, Павлодар, Қазақстан*

²⁾ *Д. Серікбаев атындағы Шығыс Қазақстан техникалық университеті, Өскемен, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: shinar_uzh@mail.ru

Мақалада Павлодар облысы аумағындағы Орта Ертіс бассейнінің инвазиялық ихтиофаунасының биологиясы мен экологиясы бойынша жаңа деректер келтірілген. Әдеби деректерді пайдалана отырып, Ертіс өзенінің жоғарғы, орта және төменгі ағысында мекендейтін бөтен түрлердің түрлік құрамы жинақталған. Орта Ертіс бассейнінде қазіргі уақытта 5 тұқымдасқа және 13 ұрпаққа жататын 15 инвазиялық балық түрі тіркелген. Түрлердің ең көп саны тұқы тұқымдасына жатады (9 түр немесе 60%), албырттар тұқымдасы 3 түрден немесе 20% - дан тұрады, қалған тұқымдастар бір түрден тұрады. Орта Ертіс бассейнінде тек үш түр ғана бейімделді және балық кәсіпшілігіне кірді: табан балық, сазан (тұқы) және көксерке. Балық аулау кәсіпшілігіндегі табан балықтың үлесі 15,7-ден 27,7 % - ға дейін., тұқының үлесі 0,2-ден 1,5 % - ға дейін, көксеркенікі 0,8-ден 1,3 % - ға дейін. Ұсталған табан балықтардың ең көп саны бөгеулерде тіркелген, тұқылар тармақтар мен көлдерде, көксерке Ертістің тармақтарында тіркелген. Регрессиялық талдау нәтижелері бар осы үш балық түрінің өсу қарқыны бойынша мәліметтер келтірілген. Балықтың тағы 11 түрін енгізу нәтижелері бойынша қысқаша мәліметтер келтірілген. Стихиялық қоныстандырулар кейде жыртқыштың немесе азықтық бәсекелесінің интродукциясы нәтижесінде биоценоздың толық қайта құрылуына, қауіпті паразиттерге немесе ауруларға ұшырауға әкеледі деген қорытынды жасалды. Көбінесе, аздаған «акклиматизация әсерінен» кейін, жерсіндірілген түр қысымына дайын емес су қоймасы кедейленіп, балықшылар үшін тартымсыз және тауарлық балық өсіру үшін келешексіз болады. Ертіс өзеніне бейімделген жекелеген инвазиялық түрлердің жаңа су қоймаларын, соның ішінде Зайсан-Ертіс бассейнінен тыс жерлерді игеру ықтималдығы жоғары. Бөтен балық түрлерінің проблемасы маңызды экологиялық проблема екенін ескере отырып, оны шешу ғылыми зерттеулерді, мониторингті, басқаруды және білім беру бағдарламаларын қамтитын кешенді тәсілді қажет етеді

Түйінді сөздер: Ертіс өзені, ихтиофауна, инвазия, балықты енгізу, биопродуктивтілік.

**К ВОПРОСУ О СОВРЕМЕННОМ СОСТОЯНИИ И ПРОБЛЕМАХ ФОРМИРОВАНИЯ
ИНВАЗИОННОЙ ИХТИОФАУНЫ БАСЕЙНА СРЕДНЕГО ИРТЫША**

А. В. Убаськин¹, К. К. Ахметов¹, В. П. Колпакова², Ж. К. Шаймарданов², Ш. Ж. Арынова^{1*}, Г. С. Ажаев¹

¹⁾ *Торайгыров университет, Павлодар, Казахстан*

²⁾ *Восточно-Казахстанский технический университет им. Д. Серикбаева, Усть-Каменогорск, Казахстан*

** E-mail для контактов: shinar_uzh@mail.ru*

В статье приведены новые данные по биологии и экологии инвазионной ихтиофауны бассейна Среднего Иртыша на территории Павлодарской области. С использованием литературных данных обобщен видовой состав чужеродных видов, обитающих в верхнем, среднем и нижнем течении реки Иртыш. В бассейне Среднего Иртыша, в настоящее время зарегистрировано 15 инвазионных видов рыб, относящихся к 5 семействам и 13 родам. Наибольшее число видов относятся к семейству карповых (9 видов или 60%), лососевые включают 3 вида или 20%, остальные семейства представлены одним видом. В бассейне Среднего Иртыша акклиматизировались и вошли в промысел только три вида: лещ, сазан (каarp) и судак. Доля в промысловых уловах составляет у леща 15,7 до 27,7%, у карпа от 0,2 до 1,5%, судака от 0,8 до 1,3%. Наибольшее число пойманных особей леща зарегистрировано в затонах, карпа в протоках и озерах, судака в протоках Иртыша. Приведены данные по темпу роста этих трех видов рыб с результатами регрессионного анализа. Кратко приведены сведения по результатам интродукции ещё 11 видов рыб. Сделан вывод, что стихийные вселения приводят иногда к полной перестройке биоценоза в результате интродукции хищника или пищевого конкурента, перенесению опасных паразитов или болезней. Чаще всего, после небольшого «эффекта акклиматизации» водоем, не готовый к прессу интродуцента, обедняется и становится малопривлекательным для рыболовов и неперспективным для товарного рыбоводства. Учитывая, что проблема чужеродных видов рыб является серьезной экологической проблемой, решение её требует комплексного подхода, включающего научные исследования, мониторинг, управление и образовательные программы

Ключевые слова: *река Иртыш, ихтиофауна, инвазия, интродукция рыб, биопродуктивность.*

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-88-95>

УДК 621.039.516

РАСЧЕТНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ В ОБОСНОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРОВЕДЕНИЯ ВНУТРИРЕАКТОРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА С ТОПЛИВОМ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО РЕАКТОРА ПРИ РЕАЛИЗАЦИИ ДЛИТЕЛЬНОГО РЕЖИМА РАБОТЫ РЕАКТОРА ИГР

**Н. Е. Мухамедов¹, В. А. Витюк¹, Г. А. Витюк¹, А. Д. Вурим¹, Р. Е. Келсингазина^{1,2*},
С. А. Должиков¹, Д. Т. Женис¹, А. С. Сураев¹**

¹ РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Курчатов, Казахстан

² Университет имени Шакарима города Семей, Семей, Казахстан

* E-mail для контактов: kelsingazina@nnc.kz

Исследования прототипов твэлов и тепловыделяющих сборок во внутриреакторных испытаниях являются неотъемлемой частью в обосновании безопасности и работоспособности разрабатываемых установок, а также необходимы для валидации расчетных кодов. Несмотря на продолжительный срок эксплуатации и большое количество проведенных исследований на реакторе ИГР, возможности этого реактора в условиях реализации длительных экспериментов на минимальной мощности остаются пока не до конца изученными. В данной работе представлено обоснование возможности реализации эксперимента с топливом энергетического реактора при реализации длительного режима работы реактора ИГР. Проведены нейтронно-физические и теплогидравлические расчеты для определения энерговыделения в топливе и конструкционных материалах экспериментального устройства, времени достижения установившегося теплообмена между твэлом и охлаждающим газом на стационарном уровне мощности твэла и распределения температуры в испытательной секции при заданных энергетических параметрах.

Ключевые слова: экспериментальное устройство, импульсный графитовый реактор, нейтронно-физические расчеты, теплогидравлические расчеты, компьютерное моделирование, минимальная мощность реактора.

ВВЕДЕНИЕ

Принципы проектирования ядерных устройств для обеспечения их безопасности предполагают внедрение новых проектных решений только после тщательного исследования и проведения прототипных испытаний [1]. Прототипные испытания возможны только в условиях экспериментов на исследовательских реакторах. Постановка таких внутриреакторных экспериментов требует контролируемого обеспечения параметров испытаний (определенного спектра нейтронов и интенсивности потока нейтронов в течение всего времени облучения, нужного распределения температуры в исследуемых конструкциях) [2], что, в свою очередь, формирует потребность в изучении и усовершенствовании методологии подготовки и проведения такого рода экспериментов.

Экспериментальные исследования, проводимые на реакторе ИГР, практически всегда направлены на обоснование безопасности элементов и систем ядерных энергетических установок путем испытания топлива и конструкционных материалов в переходных и аварийных режимах [3–5]. Данные исследования предоставляют возможность получить сведения о быстропротекающих физических и тепловых процессах в ядерных реакторах, что позволяет дать оценку работоспособности различных элементов конструкции. Результаты экспериментов также могут быть использованы для верификации существующих и разрабатываемых компьютерных кодов [6]. Различное сочетание динамических характеристик реактора ИГР и его петлевых установок обеспечивает широкие экспериментальные

возможности и условия испытаний объектов ядерной техники при различных проектных и запроектных авариях. Также возможно моделирование условий реактивных аварий, аварий с потерей теплоносителя, а также сочетание (наложение) нарушений нормальной эксплуатации или отказов.

Реактор ИГР является исследовательским импульсным графитовым реактором на тепловых нейтронах с гомогенной уран-графитовой активной зоной. Принцип его работы заключается в том, что реактор выводится из подкритического в надкритическое состояние на мгновенных нейтронах. Реактор ИГР может работать в двух режимах: режим самогасящейся вспышки и регулируемый режим («регулируемый импульс»). В первом случае реактору сообщается реактивность, превышающая долю запаздывающих нейтронов, скачок реактивности определяет начальный период разгона, амплитуду и форму импульса (вспышки). Вспышка гасится сама вследствие разогрева активной зоны из-за «мгновенного» отрицательного температурного эффекта реактивности [7]. А во втором режиме, начинаясь также с самогасящейся вспышки, перемещение стержней регулирования компенсирует падение реактивности. Вне зависимости от режима работы реактора срабатывают механизмы обратной связи, связанные с уменьшением вероятности деления ядер урана при увеличении температуры нейтронного газа в активной зоне, после чего реактор переходит обратно в подкритическое на мгновенных нейтронах состояние [8].

В настоящее время остаются не полностью изученными возможности реактора ИГР в режиме «регулируемый импульс», когда реактор работает на минимальной мощности длительное время. Исследование работы реактора ИГР в таком режиме необходимо для понимания его предельных возможностей в условиях, когда энерговыделение в реакторе сравнимо с величиной утечки тепла из активной зоны. Так на сегодняшний день заявленными техническими характеристиками реактора являются максимальная плотность потока тепловых нейтронов равная $7,0 \cdot 10^{16}$ н/(см²·с) и максимальный флюенс тепловых нейтронов – $3,7 \cdot 10^{16}$ н/см² [4]. Однако они относятся к компоновке реактора с пустым экспериментальным каналом, а для экспериментального канала с облучательным устройством являются не истинными. Помимо этого, к заявленным характеристикам можно отнести и величину энерговыделения реактора ИГР, равную 5200 МДж [4]. Как показала практика, данная величина может варьироваться как в большую, так и в меньшую сторону, в зависимости от длительности пуска.

Вопросы безопасности ядерной энергетики становятся все более актуальными, в связи с чем класс и сложность экспериментов на реакторе ИГР непрерывно повышаются, что является основным фактором к детальному изучению реактора ИГР, его возможностей, потенциала и уточнению основных параметров.

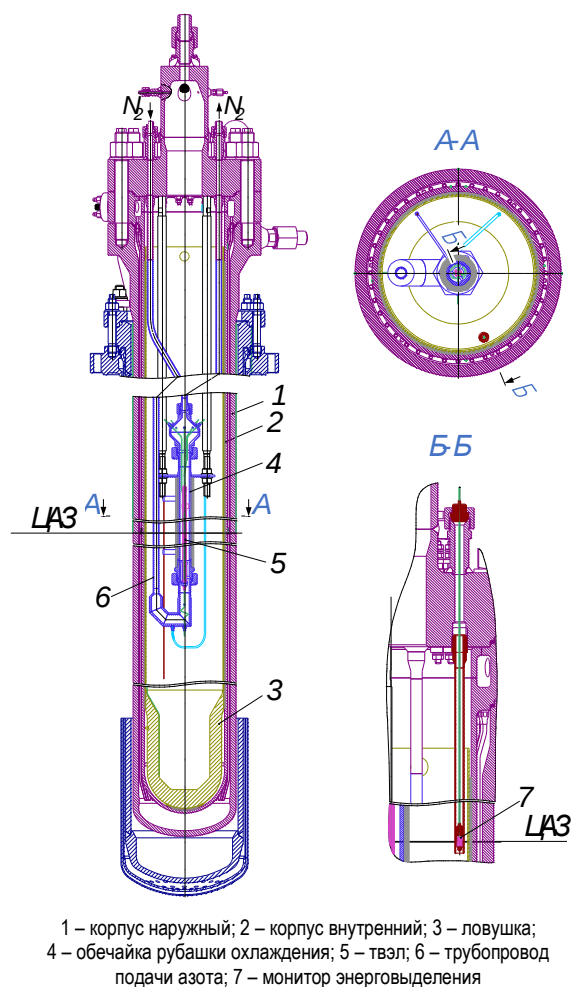
В Национальном ядерном центре Республики Казахстан в рамках Республиканской бюджетной программы «Развитие атомных и энергетических проектов» с 2024 года выполняются работы по исследованию возможности проведения облучательных экспериментов с топливом энергетического реактора при реализации длительного режима реактора ИГР. Научная новизна работы заключается в том, что впервые будут проведены экспериментальные исследования по определению предельных режимов работы реактора ИГР с топливом энергетического реактора. Обоснование возможности реализации длительных режимов работы реактора существенно расширит область его применения, в том числе, для экспериментов с облучательными устройствами, где основное значение имеет величина флюенса потока нейтронов.

Первый этап данной работы предполагает расчетно-теоретическое обоснование возможности проведения внутриреакторных экспериментов. Главным критерием для реализации данного этапа является обеспечение целостности конструкции экспериментального устройства и измерительного оборудования в ходе проведения длительного эксперимента. Таким образом, целью выполнения расчетно-теоретического обоснования возможности проведения внутриреакторных экспериментов является определение граничных условий, при которых рабочая температура конструктивных элементов экспериментального устройства не будут достигать допустимых проектных значений.

В статье представлены расчетные исследования в обоснование возможности проведения внутриреакторного эксперимента с топливом энергетического реактора при реализации длительного режима работы реактора ИГР. Проведены нейтронно-физические и теплогидравлические расчеты для определения энерговыделения в топливе и конструкционных материалах экспериментального устройства, времени достижения установившегося теплообмена между твэлом и охлаждающим газом на стационарном уровне мощности твэла и распределения температуры в испытательной секции при заданных энергетических параметрах. По результатам данного расчетного исследования будет разработана программа испытаний экспериментального устройства на реакторе ИГР в режиме «Регулируемый импульс», в которой будут определены условия и порядок проведения исследований.

КОНСТРУКЦИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА

Обоснование возможности реализации длительных режимов работы реактора ИГР осуществлялось с использованием экспериментального устройства (ЭУ) представленного на рисунке 1.



1 – корпус наружный; 2 – корпус внутренний; 3 – ловушка; 4 – обечайка рубашки охлаждения; 5 – твэл; 6 – трубопровод подачи азота; 7 – монитор энерговыделения

Рисунок 1. Конструктивная схема ЭУ

Основными элементами конструкции ЭУ являются силовой корпус (корпус наружный и корпус внутренний), испытательная секция, ловушка, трубопровод подачи и отвода газообразного азота. Испытательная секция представляет собой сварную конструкцию и предназначена для размещения в ней твэла и обечайки рубашки охлаждения, который организовывает тракт охлаждения твэла в процессе проведения эксперимента. Вход и выход охлаждающего газа в тракт охлаждения испытательной секции осуществляется по трубопроводам. В качестве топлива энергетического реактора для реализации эксперимента был выбран тип таблеток реактора на быстрых нейтронах БН-350. Основные параметры твэла представлены в таблице 1.

Таблица 1. Технические характеристики твэла

Наименование параметра	Значение
Наружный диаметр оболочки твэла, мм	6,9
Толщина стенки оболочки, мм	0,4
Материал оболочки	09X16H15M3Б
Топливо	UO ₂
Содержание ²³⁵ U в топливе, %	~17
Плотность топливной таблетки, г/см ³	10,3...10,8
Наружный диаметр топливной таблетки, мм	5,9±0,02
Диаметр отверстия топливной таблетки, мм	1,5±0,1
Высота топливного столба, мм	900±5

Ловушка предназначена для защиты внутреннего корпуса ампулы от прямого контакта с расплавом топлива при его проливе в случае разрушения испытательной секции во время эксперимента. Ловушка теплоизолирована от внутреннего корпуса ампулы слоем графитового войлока.

Три штанги являются силовыми элементами и предназначены для стыковки испытательной секции с крышкой ампулы. Штанги обеспечивают возможность регулировки высотного расположения испытательной секции в диапазоне не менее ±25 мм. С помощью штанг обеспечивается перпендикулярность оси испытательной секции относительно крышки ампулы.

В конструкции ЭУ предусмотрена установка сменного монитора энерговыделения. Сменный монитор энерговыделения предназначен для косвенного определения энерговыделения в топливе и представляет собой топливную таблетку типа БН-350 обогащением 0,27% по ²³⁵U, размещенную в стальном пенале на уровне центра активной зоны реактора ИГР на внешней поверхности испытательной секции.

Для регистрации температуры, в процессе реализации внутриреакторных исследований, в конструктивных материалах экспериментального устройства и в топливе будут использоваться термомпары типа хромель-алюмель (ХА). Они будут установлены в центре топливного столба, на оболочке твэла, на обечайке рубашки охлаждения, а также на внутреннем и наружном корпусах ЭУ.

УСЛОВИЯ ИСПЫТАНИЙ

Для проведения эксперимента необходимо организовать следующую последовательность событий в эксперименте:

- организация циркуляции азота в экспериментальном устройстве с использованием внешнего петлевого контура;
- ядерный нагрев твэла на номинальной мощности реактора ИГР до обеспечения стационарного режима разогрева азота, проходящего через испытательную секцию;
- поддержание стационарного состояния испытательной секции при дальнейшем ядерном нагреве твэла на минимальной мощности реактора.

Основные условия проведения эксперимента представлены в таблице 2.

Таблица 2. Основные условия проведения эксперимента

Параметр	Значение
Теплоноситель	азот
Температура теплоносителя на входе в испытательную секцию, К	293
Давление теплоносителя на входе в ТВС, МПа	2
Средняя мощность твэла по высоте, кВт	3
Расход теплоносителя, кг/с	0,1

Средняя мощность в твэле и расход теплоносителя (таблица 2) были определены по результатам предварительных тепловых аналитических расчетов, для обеспечения условий, при которых температура топливного столба не превысит значения 1000 К.

НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИЕ РАСЧЕТЫ

Расчет нейтронно-физических характеристик эксперимента выполнялся на основе численного моделирования активной зоны реактора ИГР [9] с экспериментальным устройством с использованием расчетного кода MCNP6 [10] с библиотекой ядерных данных ENDF/B-VII.0. Моделирование ЭУ осуществлялось с соблюдением основных размерно-материальных характеристик. Топливный столб смоделирован единым стержнем без фасок и пазов. Вид объединенной расчетной модели представлен на рисунке 2. Также в нейтронно-физической модели был смоделирован сменный монитор энерговыделения.

В результате проведенных расчетов определено отношение удельного энерговыделения в топливе и конструктивных материалах экспериментального устройства к энерговыделению в реакторе по формуле:

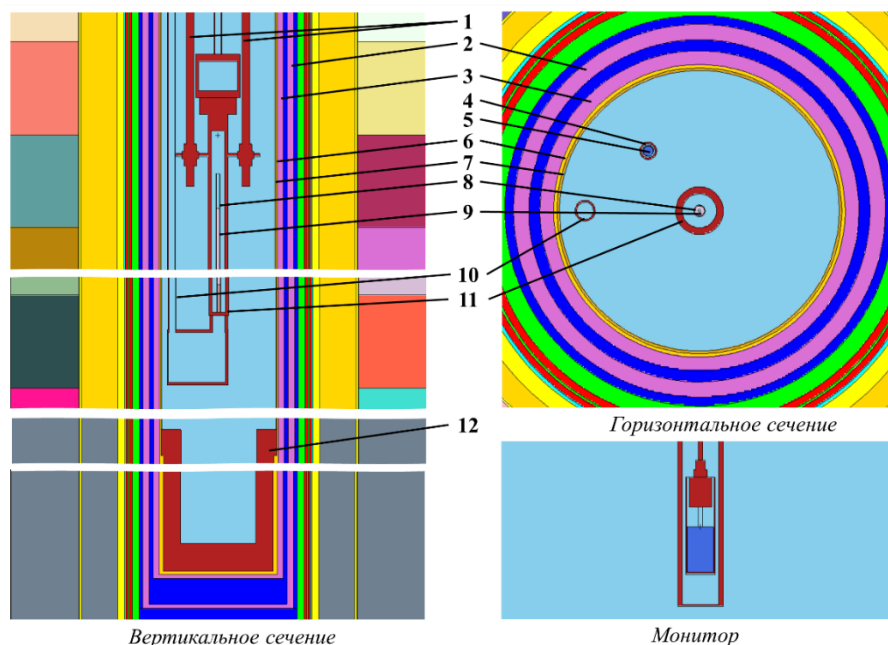
$$k = \frac{q}{Q} \cdot \frac{1}{m},$$

где q – энерговыделение в материале, о.е.; Q – энерговыделение в реакторе ИГР, о.е.; m – масса материала, г.

Средние значения отношения удельного энерговыделения в топливе твэла и в мониторе к энерговыделению в реакторе ИГР приведены в таблице 3.

Таблица 3. Среднее значение отношения удельного энерговыделения в твэле и в мониторе к энерговыделению в реакторе ИГР

Параметр	Отношение удельного энерговыделения к энерговыделению в реакторе, $\text{Дж/г}(\text{UO}_2)/\text{Дж/г}$
Твэл	$3,85 \cdot 10^{-6}$
Монитор	$1,53 \cdot 10^{-7}$



1 – штанги; 2 – корпус наружный; 3 – корпус внутренний; 4 – пенал; 5 – монитор; 6 – графитовая вата; 7 – лайнер; 8 – оболочка твэла; 9 – топливо; 10 – трубопровод азота; 11 – обечайка; 12 – ловушка

Рисунок 2. Объединенная расчетная модель ИГР и ЭУ

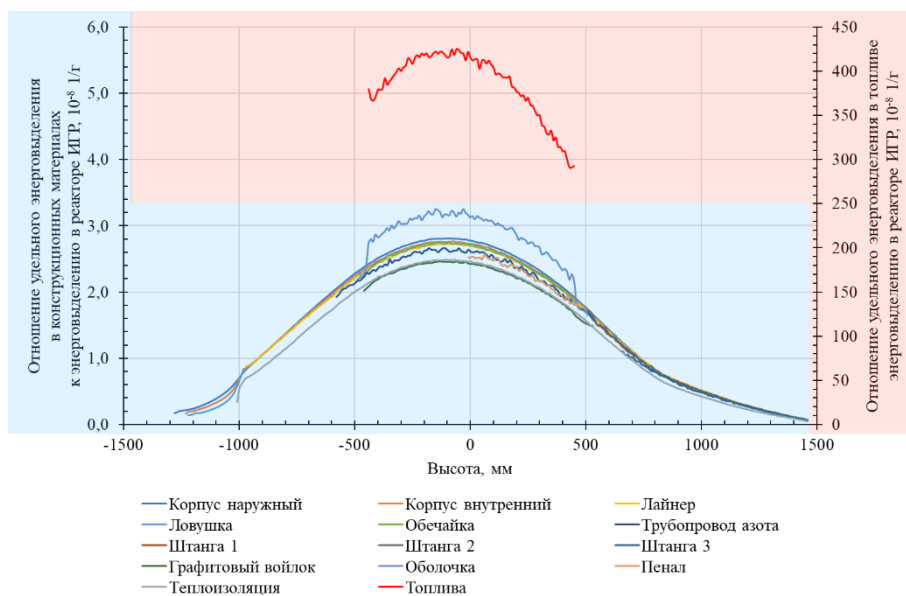


Рисунок 3. Распределение энерговыделения в топливе и в основных конструкционных материалах по высоте экспериментального устройства

Результаты нейтронно-физических расчетов в дальнейшем использовались в качестве входных данных для проведения теплогидравлических расчетов. На рисунке 3 представлено распределение энерговы-

деления в топливе и в основных конструкционных материалах по высоте экспериментального устройства. Отметка «0» соответствует центру активной зоны реактора ИГР.

ТЕПЛОГИДРАВЛИЧЕСКИЕ РАСЧЕТЫ

Теплогидравлическая модель ЭУ и граничные условия для расчета

При проведении теплогидравлических расчетов необходимо было решить задачи, связанные с определением теплового состояния испытательной секции, а также определить время достижения установившегося режима теплообмена между твэлом и теплоносителем на стационарном уровне мощности твэла. Для выполнения поставленных задач с использованием программного пакета Ansys Fluent [11] была разработана трехмерная математическая модель, позволяющая произвести расчет необходимых параметров. Модель учитывала распределение поля скоростей теплоносителя в испытательной секции, соответствующее значению расхода азота 0,1 кг/с в тракте охлаждения устройства, и заданное распределение мощности в модельном твэле (3 кВт).

Основываясь на условиях осевой симметрии устройства, для расчета был выбран сегмент 1/2 части испытательной секции ЭУ, включающей в себя сегменты: твэла, азота в зазоре между твэлом и обечайкой испытательной секции, обечайки, теплоизоляции и трубопровода подачи азота с теплоносителем. Расчетная сетка модели испытательной секции включала в себя 641 517 четырехугольных призматических и полиэдральных элементов (рисунок 4).

Расчет теплогидравлических параметров испытательной секции ЭУ проводился в соответствии с полученными данными нейтронно-физических характеристик для модельного твэла ЭУ и конструктивных материалов испытательной секции (рисунок 3).

Расход азота, равный 0,1 кг/с, обеспечивает турбулентное течение теплоносителя в тракте охлаждения испытательной секции (число Рейнольдса превышает 10000). Учет турбулентности потока осуществлялся с использованием стандартной k-ε модели,

описывающей массовую плотность турбулентной энергии k и скорость диссипации турбулентной энергии ε. На внешней стенке теплоизоляционного материала, а также трубопровода азота задавались условия конвективного теплообмена с окружающей средой с температурой 293 К и коэффициентом теплоотдачи 5 Вт/(м²·К). На боковых стенках модели заданы условия симметрии.

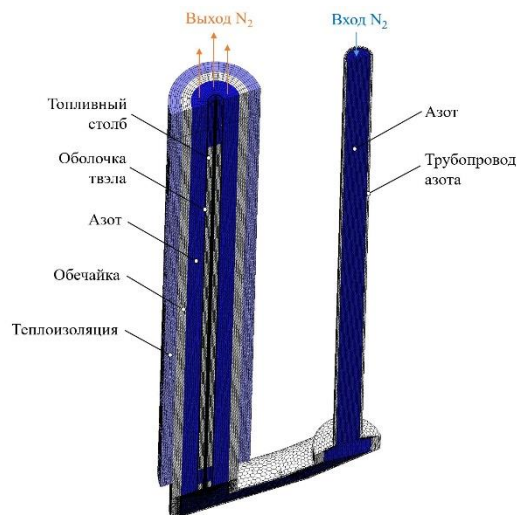


Рисунок 4. Расчетная сетка модели испытательной секции ЭУ

Свойства материалов, использованные при проведении расчетов, принимались из литературных источников [12, 13].

Результаты теплогидравлического расчета

Результаты расчета температурного поля в материалах испытательной секции ЭУ и поле скоростей азота при установившемся режиме теплообмена между твэлом и теплоносителем на стационарном уровне мощности твэла представлены на рисунке 5.

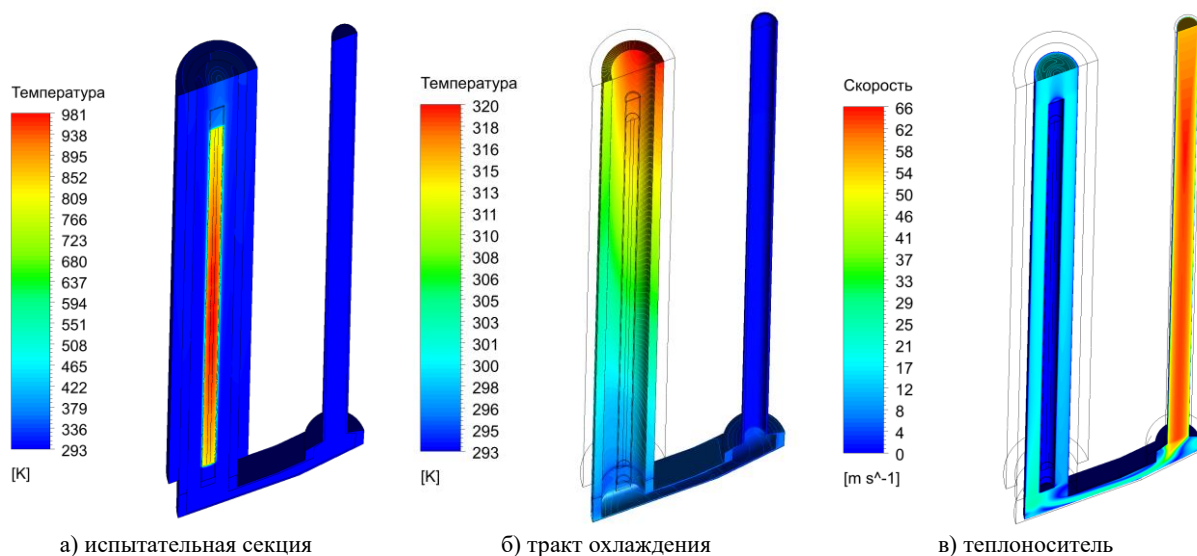


Рисунок 5. Температурное поле в материалах испытательной секции ЭУ и поле скоростей азота при установившемся режиме теплообмена между твэлом и теплоносителем на стационарном уровне мощности твэла

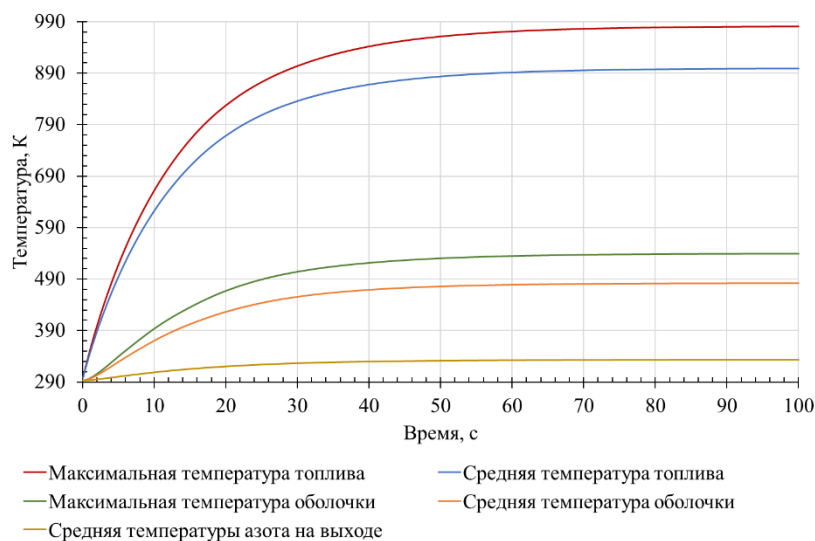


Рисунок 6. Изменение температуры в топливе, оболочке ТВЭЛ и теплоносителе на выходе из тракта охлаждения азота при скачкообразном подъеме мощности в модельном ТВЭЛ с нулевого значения до значения 3 кВт

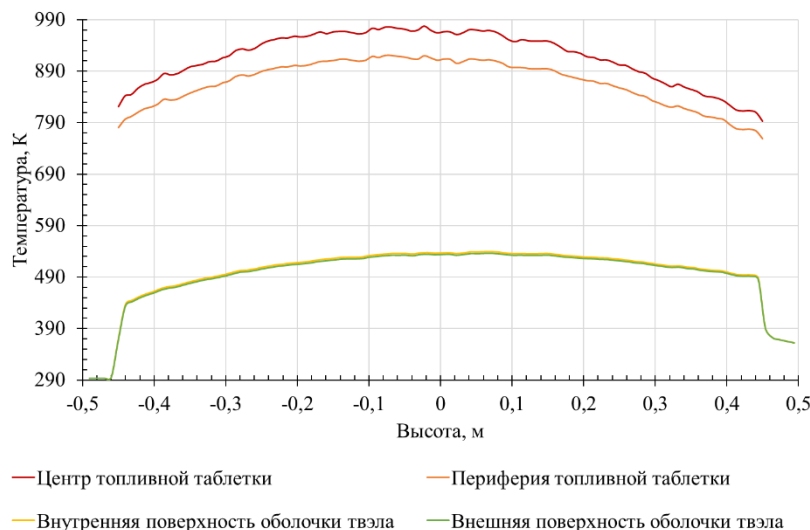


Рисунок 7. Распределение температуры в центре таблетки, на периферии таблетки, внутренней и наружной стенки оболочки ТВЭЛ по высоте ТВЭЛ

Время достижения установившегося режима теплообмена между модельным ТВЭЛом и азотом в испытательной секции рассчитывалось при условии, что на момент подъема мощности в ЭУ наблюдается установившаяся циркуляция теплоносителя с расходом 0,1 кг/с, а начальная температура теплоносителя и материалов устройства равна 293 К. Принималось, что подъем мощности происходит скачком с нулевого значения до значения равного 3 кВт.

Изменение температуры в топливе, оболочке ТВЭЛ и теплоносителе на выходе из тракта охлаждения азота иллюстрирует рисунок 6.

Максимальная температура модельного ТВЭЛ в испытательной секции экспериментального устройства при заданных энергетических параметрах достигает значения 981 К и наблюдается в центральной ча-

сти ТВЭЛ. Максимальная температура оболочки ТВЭЛ составляет 540 К. Установившийся режим теплообмена достигается через ~50 секунд от момента выхода на стационарный уровень мощности реактора ИГР.

Распределение температуры в центре таблетки, на периферии таблетки, а также внутренней и наружной стенки оболочки по высоте ТВЭЛ, при достижении установившегося режима теплообмена между ТВЭЛом и азотом на стационарном уровне мощности ТВЭЛ представлено на рисунке 7.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках данной работы были проведены нейтронно-физические и теплогидравлические расчеты в обоснование возможности реализации длительных

режимов работы реактора ИГР с экспериментальным устройством.

По итогам проведенных расчетов было определено:

- отношение среднего удельного энерговыделения в топливе и в конструкционных материалах ЭУ к энерговыделению в реакторе, равное $3,85 \cdot 10^{-6}$ Дж/г(UO₂)/Дж_{ИГР};

- распределение энерговыделения в топливе и в основных конструкционных материалах по высоте экспериментального устройства, необходимое для проведения теплогидравлических расчетов;

- распределение температуры в испытательной секции экспериментального устройства при заданных энергетических параметрах;

- время достижения установившегося режима теплообмена между твэлом и азотом на стационарном уровне мощности твэла, равное ~50 секундам от момента выхода на стационарный уровень мощности реактора ИГР.

Результаты расчетов показали, что проведение эксперимента не ограничено тепловыми параметрами экспериментального устройства. Таким образом, обоснована возможность проведения внутриреакторных экспериментов в режиме «Регулируемый импульс» с топливом энергетического реактора при реализации длительного режима работы реактора ИГР.

Благодарности

Данные исследования финансировались Министерством энергетики Республики Казахстан в рамках научно-технической программы BR24792713 «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан».

ЛИТЕРАТУРА

1. Основные принципы безопасности атомных электростанций 75-INSAG-3 Rev.1. INSAG-12. Доклад Международной консультативной группы по ядерной безопасности. Международное агентство по атомной энергии. – Вена. – 2015.
2. Бат' Г.А., Коченов А.Ч., Кабанов Л.П. Исследовательские ядерные реакторы. – М.: Атомиздат. – 1972.
3. Batyrbekov E., Vityuk V., Vurim A., Vityuk G. Experimental opportunities and main results of the impulse graphite reactor use for research in safety area / Annals of Nuclear Energy. – 2023. – Vol. 182. – P. 109582. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.109582>
4. Vityuk V., Vityuk G., Vurim A., Irkimbekov R., Kukushkin I., Surayev A., Mukhamedov N. Testing of a heterogeneous fuel rod in the research Impulse Graphite Reactor // Progress in Nuclear Energy. – 2023. – Vol. 164. 104889. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2023.104889>
5. Витюк В.А., Вурим А.Д., Котов В.М., Витюк Г.А., Иданова Д.С. Подготовка реакторных экспериментов по изучению тяжелой аварии быстрого реактора с натриевым теплоносителем // Труды VIII Международной научно-практической конференции «Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине. – Томск, ТПУ. – 2016. – С. 29–30.

6. Kelsingazina R., Vityuk V., Vurim A., Vityuk G., Mukhamedov N., Tikhomirov G. Computational approaches for determining the nuclear heating value of structural materials during the irradiation at the IGR reactor / Annals of Nuclear Energy. – 2024. – Vol. 204. P. 110532. – ISSN 0306-4549. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2024.110532>
7. Шабалин Е.П. Импульсные реакторы на быстрых нейтронах. – М.: Атомиздат. – 1976. – с. 248.
8. Лукин А.В. Физика импульсных ядерных реакторов. – Снежинск: Изд-во РФЯЦ – ВНИИТФ. – 2006. – 528 с.
9. Компьютерная модель реактора ИГР для стационарных нейтронно-физических расчетов: а.с. №2738 от 27.12.16 Республика Казахстан / А.Д. Вурим, В.М. Котов, Р.А. Иркимбеков, Л.К. Жагипарова, А.А. Байгожина.
10. MCNP User's Manual Code Version 6.2. Los Alamos National Laboratory Tech. Rep. LA-UR-17-29981. Los Alamos, NM, USA. October 2017.
11. ANSYS Inc. – Release 21.1.0. – USA, 2021.
12. Чиркин В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. – М.: Атомиздат. – 1968. – 484 с.
13. Thermophysical properties of materials for nuclear engineering: a tutorial and collection of data. – IAEA, Vienna. – 2008. http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/IAEA-THPH_web.pdf

REFERENCES

1. Osnovnye printsiipy bezopasnosti atomnykh elektrostantsiy 75-INSAG-3 Rev.1. INSAG-12. Doklad Mezhdunarodnoy konsul'tativnoy gruppy po yadernoy bezopasnosti. Mezhdunarodnoe agentstvo po atomnoy energii. – Vena. – 2015.
2. Bat' G.A., Kochenov A.Ch., Kabanov L.P. Issledovatel'skie yadernye reaktory. – Moscow: Atomizdat. – 1972.
3. Batyrbekov E., Vityuk V., Vurim A., Vityuk G. Experimental opportunities and main results of the impulse graphite reactor use for research in safety area / Annals of Nuclear Energy. – 2023. – Vol. 182. – P. 109582. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.109582>
4. Vityuk V., Vityuk G., Vurim A., Irkimbekov R., Kukushkin I., Surayev A., Mukhamedov N. Testing of a heterogeneous fuel rod in the research Impulse Graphite Reactor // Progress in Nuclear Energy. – 2023. – Vol. 164. 104889. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2023.104889>
5. Vityuk V.A., Vurim A.D., Kotov V.M., Vityuk G.A., Idanova D.S. Podgotovka reaktornykh eksperimentov po izucheniyu tyazhelyoy avarii bystrogo reaktora s natrievym teplonositelem // Trudy VIII Mezhdunarodnoy nauchno-prakticheskoy konferentsii «Fiziko-tekhnicheskie problemy v nauke, promyshlennosti i meditsine. – Tomsk, TPU. – 2016. – P. 29–30.
6. Kelsingazina R., Vityuk V., Vurim A., Vityuk G., Mukhamedov N., Tikhomirov G. Computational approaches for determining the nuclear heating value of structural materials during the irradiation at the IGR reactor / Annals of Nuclear Energy. – 2024. – Vol. 204. P. 110532. – ISSN 0306-4549. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2024.110532>
7. Shabalin E.P. Impul'snye reaktory na bystrykh neytronakh. – Moscow: Atomizdat. – 1976. – p. 248.
8. Lukin A.V. Fizika impul'snykh yadernykh reaktorov. – Snezhinsk: Izd-vo RFYaTs – VNIITF. – 2006. – 528 p.

9. Komp'yuternaya model' reaktora IGR dlya statsionarnykh neytronno-fizicheskikh raschetov: a.s. No. 2738 ot 27.12.16 Respublika Kazakhstan / A.D. Vurim, V.M. Kotov, R.A. Irkimbekov, L.K. Zhagiparova, A.A. Baygozhina.
10. MCNP User's Manual Code Version 6.2. Los Alamos National Laboratory Tech. Rep. LA-UR-17-29981. Los Alamos, NM, USA. October 2017.
11. ANSYS Inc. – Release 21.1.0. – USA, 2021.
12. Chirkin V.S. Teplofizicheskie svoystva materialov yadernoy tekhniki. – Moscow: Atomizdat. – 1968. – 484 p.
13. Thermophysical properties of materials for nuclear engineering: a tutorial and collection of data. – IAEA, Vienna. – 2008. http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/IAEA-THPH_web.pdf

ИГР РЕАКТОРЫ ЖҰМЫСЫНЫҢ ҰЗАҚ РЕЖИМІН ІСКЕ АСЫРУ КЕЗІНДЕ ЭНЕРГЕТИКАЛЫҚ РЕАКТОРДЫҢ ОТЫНЫМЕН ІШКІ РЕАКТОРЛЫҚ ЭКСПЕРИМЕНТ ЖҰРГІЗУ МҮМКІНДІГІН НЕГІЗДЕУГЕ АРНАЛҒАН ЕСЕПТІК ЗЕРТТЕУЛЕР

**Н. Е. Мухамедов¹, В. А. Витюк¹, Г. А. Витюк¹, А. Д. Вурим¹,
Р. Е. Келсингазина^{1,2*}, С. А. Должиков¹, Д. Т. Жеңіс¹, А. С. Сураев¹**

¹⁾ «Қазақстан Республикасының Ұлттық Ядролық орталығы» РМК, Курчатов, Қазақстан

²⁾ Семей қаласының Шәкәрім атындағы университеті, Семей, Қазақстан

* Байланыстар үшін E-mail: kelsingazina@nnc.kz

Твэлдер мен жылу бөлетін құрастырмалардың прототиптерін ішкі реакторлық сынауларда зерттеу әзірленетін қондырғылардың қауіпсіздігі мен жұмыс қабілеттілігін негіздеудің ажырамас бөлігі болып табылады, сондай-ақ есептік кодтарды валидациялау үшін қажет. Ұзақ пайдалану мерзіміне және ИГР реакторында жүргізілген зерттеулердің көп болуына қарамастан, осы реактордың мүмкіндіктері ең аз қуаттағы ұзақ эксперименттерді іске асыру жағдайында әлі толық зерттелмеген. Бұл жұмыста ИГР реакторының ұзақ жұмыс режимін іске асыру кезінде энергетикалық реактордың отынымен экспериментті іске асыру мүмкіндігінің негіздемесі ұсынылған. Отында және эксперименттік құрылғының конструкциялық материалдарында энергия бөлуді, твэл қуатының стационарлық деңгейінде твэл мен салқындатқыш газ арасында орнатылған жылу алмасуға қол жеткізу және берілген энергетикалық параметрлер кезінде сынақ секциясында температураны бөлу уақытын анықтау үшін нейтрондық-физикалық және жылу-гидравликалық есептеулер жүргізілді.

Түйін сөздер: эксперименттік құрылғы, импульстік графиттік реактор, нейтронды-физикалық есептеулер, жылу-гидравликалық есептеулер, компьютерлік модельдеу, реактордың минималды қуаты.

COMPUTATIONAL STUDIES IN SUPPORT OF POSSIBILITY OF CONDUCTING AN IN-PILE EXPERIMENT WITH POWER REACTOR FUEL DURING THE IMPLEMENTATION OF THE LONG-TERM OPERATION MODE OF THE IGR REACTOR

**N. Ye. Mukhamedov¹, V. A. Vityuk¹, G. A. Vityuk¹, A. D. Vurim¹,
R. Ye. Kelsingazina^{1,2*}, S. A. Dolzhikov¹, D. T. Zhengis¹, A. S. Suraev¹**

¹⁾ RSE “National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan”, Kurchatov, Kazakhstan

²⁾ Shakarim University of Semey, Semey, Kazakhstan

* E-mail for contacts: kelsingazina@nnc.kz

Research of prototype fuel elements and fuel assemblies in in-pile tests are an integral part in substantiating the safety and operability of installations being designed, and are also necessary for validating the calculation codes. Despite the long service life and a large number of studies conducted in the IGR reactor, the capabilities of this reactor under conditions of implementing long-term experiments at minimum power are still not fully clear. This paper presents a substantiation of the possibility of implementing an experiment with power reactor fuel during the implementation of the long-term operation mode of the IGR reactor. Neutronic and thermal-hydraulic calculations were performed to determine the energy release in the fuel and structural materials of the experimental device, the time to achieve steady-state heat exchange between the fuel element and the cooling gas at a steady-state fuel element power level, and the temperature distribution in the test section at specified energy parameters.

Keywords: experimental device, impulse graphite reactor, neutronic calculations, thermal-hydraulic calculations, computer modeling, minimum reactor power.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-96-100>

УДК 533.9.08; 621.039.66

ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ПОТЕРЬ ПЛАЗМЫ НА ТОКАМАКЕ КТМ

А. Ж. Дуйсен^{1*}, Б. Ж. Чектыбаев^{1,2}, Е. А. Кашикбаев^{1,2}, А. А. Жаксыбаева¹

¹⁾ Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

²⁾ Университет имени Шакарима города Семей, Казахстан

* E-mail для контактов: duysen@nnc.kz

В данной работе показаны результаты измерений радиационных потерь плазмы на токамаке КТМ, полученные с использованием модифицированного обзорного пироэлектрического болометра. Представлены технические особенности и размещение диагностики радиационных потерь плазмы токамака КТМ. Продемонстрированы первые экспериментальные результаты, которые показали работоспособность диагностики в условиях КТМ. Произведен расчет полной мощности радиационных потерь плазмы в режиме омического нагрева с лимитерной конфигурацией.

Ключевые слова: плазма, токамак, КТМ, радиационные потери плазмы, болометр.

ВВЕДЕНИЕ

Вопросы удержания плазмы и исследования в области материаловедения для термоядерных реакторов на установках управляемого термоядерного синтеза (УТС) остаются чрезвычайно актуальными. Выбор материалов первой стенки, обращенных к высокотемпературной плазме, является одной из необходимых критериев для поддержания УТС, так как напрямую влияет на качественные характеристики получаемой плазмы. Казахстанский материаловедческий токамак (КТМ) является первым в мире специализированным токамаком, предназначенным для получения высокотемпературной плазмы и проведения исследований перспективных материалов для первой стенки будущих термоядерных реакторов, который способен обеспечить тепловые потоки сравнимые с ИТЭР. КТМ на сегодняшний день является самым большим сферическим токамаком в мире из введенных в эксплуатацию, входит в десятку крупных токамаков мира и имеет следующие параметры: $R = 0.9$ м; $a = 0.45$ м; $A = 2$; $I_p = 750$ кА; $t = 5$ с [1].

Для обеспечения эффективной работы токамака как источника электрической энергии необходимо добиться ряда условий. Одно из которых увеличение полученной мощности от вкладываемой мощности в 10 раз. Интегральный баланс энергии в установке определяется уравнением:

$$\frac{\partial W}{\partial t} = P_{OH} - \frac{W}{\tau_E} - P_{rad}, \quad (1)$$

где W — запас энергии в плазме, P_{OH} — мощность омического нагрева, τ_E — энергетическое время жизни плазмы, P_{rad} — радиационные потери. Для определения энергетического времени жизни τ_E необходимо знать мощность радиационных потерь P_{rad} . Необходимость определения энергетического времени жизни τ_E обусловлена его присутствием в критерии Лоусона, при выполнении которого осуществляется реакция синтеза с положительным выходом энергии [2].

Радиационные потери плазмы — мощность электромагнитного излучения, возникающих при взаимодействии содержащихся в плазме частиц. Радиационные потери плазмы могут быть проблемой при эксплуатации токамака, поскольку они вызывают уменьшение температуры плазмы и снижают эффективность обеспечения условий для термоядерного синтеза.

Измерения радиационных потерь плазмы позволяют изучать поведение примесей, механизм их поступления и динамику движения в плазме. Важность измерения мощности радиационных потерь обусловлена тем, что доля уносимой энергии может достигать 80% от всей вкладываемой мощности

В настоящей работе мы приводим результаты работ по исследованию радиационных потерь плазмы на токамаке КТМ с использованием модифицированного пироэлектрического болометра.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Диагностический комплекс для измерения полных радиационных потерь, разработанный для токамака КТМ, использует пироэлектрический болометр. Чувствительным элементом (ЧЭ) соответственно является пироэлектрический кристалл [3].

Ранее на токамаке КТМ в качестве чувствительного элемента пироэлектрического болометра использовался кристалл ниобата лития (см. рисунок 1а), выполненного в виде диска диаметром 10 мм и толщиной 1 мм. ЧЭ размещался между двух медных электродов и зажимался при помощи закручиваемой крышки (диафрагмы). При такой конструкции основной недостаток заключался в большой вероятности разрушения чувствительного элемента при его установке и зажатии в корпусе болометра. Также проводники, контактирующие с ЧЭ, подвергались воздействию вибрации во время экспериментальных разрядов, что приводило к ухудшению контакта и увеличению шума.

На рисунке 1 приведено изображение элементов пироболометра до модернизации.



а) внешний вид детектора



б) детектор, установленный в корпус диагностики



в) болометр в сборе

Рисунок 1. Обзорный болометр до модернизации

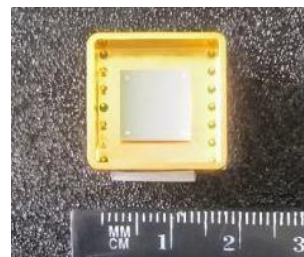
На рисунке 2 показан болометр с новым пирозлектрическим детектором. Кристалл имеет размеры 10×10 мм и толщину 50 мкм, с толщиной электродного слоя 5 мкм. Кристалл поставляется с завода установленным в корпус ТО-14, имеющим выходные контакты. Данное исполнение позволило улучшить соотношения сигнал/шум во время экспериментальных разрядов благодаря виброустойчивости и надежному контакту ЧЭ с корпусом.

Использование нового детектора также позволило повысить чувствительность диагностики к излучению плазмы и улучшить эксплуатационные характеристики. После сбора диагностики с новым детектором была проведена его настройка и калибровка, после чего произведена установка на штатное место на ВК КТМ.

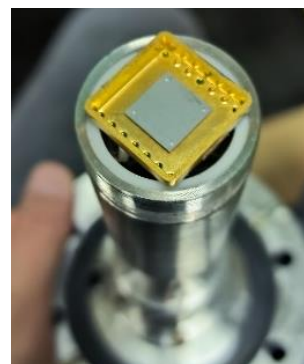
Пирозлектрический болометр крепится на фланце сектора № 8 экваториального патрубка вакуумной камеры (ВК) токамака КТМ и имеет углы обзора в тороидальном сечении – 6° , в полоидальном сечении – 39° (см. рисунок 3).

Корпус пирозлектрического болометра изготовлен из нержавеющей стали 12Х18Н10Т, для уменьшения влияния электромагнитных наводок. В качестве усилителя сигнала выбран фемтоамперный операционный усилитель LMC6001, так как ток ЧЭ нахо-

дится в пикоамперном диапазоне, что приводит к необходимости использования прецизионных усилителей с очень низким током утечки и большим коэффициентом усиления.

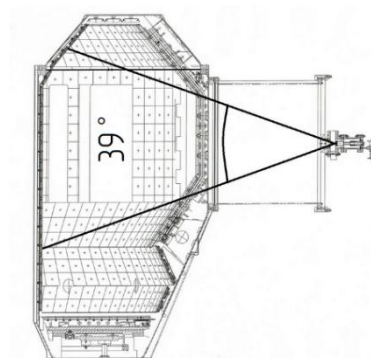


а) внешний вид нового детектора

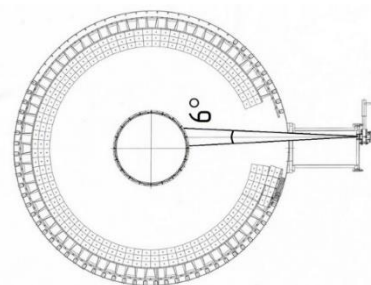


б) детектор, установленный в корпус диагностики

Рисунок 2. Болометр в сборе с новым пирозлектрическим детектором



а) полоидальное сечение



б) тороидальное сечение

Рисунок 3. Хорда регистрации излучения пирозлектрического болометра

Калибровка пирозлектрического болометра

Для определения чувствительности болометра была произведена калибровка в лабораторных условиях. Для калибровки пирозлектрического болометра используются осциллограф, автоматизированный оптический затвор модели LS2S2ZM1-EC-105 и контроллер VCM-D1 для управления шторкой затвора, оптический лазер с длиной волны 650 нм и измеритель мощности Sanwa LP1. На рисунке 4 приведена принципиальная схема калибровки пирозлектрического болометра.



Рисунок 4. Принципиальная схема калибровки пирозлектрического болометра

С оптического лазера подается излучение на пирозлектрический болометр, который подсоединен к источнику питания и осциллографу. Для определения времени компенсации и времени нарастания необходим импульсный сигнал. Поэтому используется автоматизированный оптический затвор. Контроллеру оптического затвора подается импульсный сигнал с помощью генератора частотой 10 Гц, с рабочим циклом в 30, 40, 50% (мс) и амплитудой 5 В, необходимый для управления шторкой затвора.

Изначально определяется мощность лазера с помощью измерителя мощности, далее выходной сигнал пироболометра регистрируется осциллографом. По измеренным величинам мощности лазера и сигнала с болометра, рассчитывается нормировочный коэффициент по формуле 2:

$$k = \frac{U_{out}}{P}, \quad (2)$$

где U_{out} – выходное напряжение, 50 мВ; P – мощность излучения оптического лазера, 1,84 мВт; k – нормировочный коэффициент, 27 В/Вт.

Для увеличения точности измерений и уменьшения погрешности при определении нормировочного коэффициента требуется проведение нескольких измерений. В связи с этим измерения проводились с разной длительностью лазерного излучения 30, 40, 50 мс.

На графике 5 показано время работы оптического затвора, а также выходное напряжение, регистрируемое пирозлектрическим болометром. Спад напряжения на графике связан с физическими свойствами и принципом работы пирозлектрического кристалла. При регистрации излучения пирозлектрический детектор генерирует заряд. Далее заряд, проходя через

схему усиления, проявляется как напряжение. Из-за высокого сопротивления материала кристалла с течением времени накопленный заряд разряжается. Это приводит к постепенному спаду напряжения.

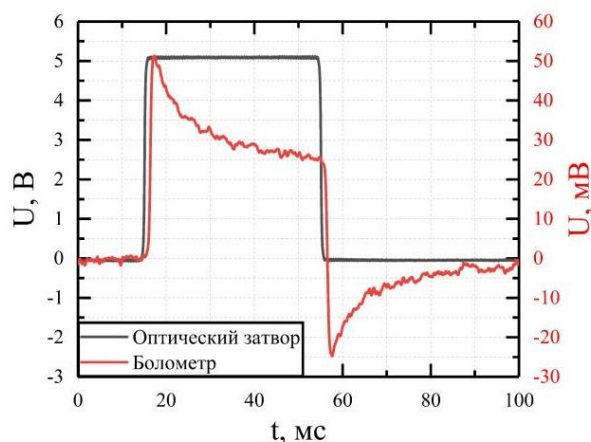


Рисунок 5. График регистрации излучения лазера

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

По итогам проведения экспериментальной кампании на токамаке КТМ по получению плазменных разрядов в режиме омического нагрева с лимитерной конфигурацией, были получены разряды с током плазмы 500 кА и длительностью 1,5 с. Для измерения полных радиационных потерь плазмы использовался модифицированный пирозлектрический болометр.

Для анализа был выбран один из успешных разрядов с $I_p = 500$ кА и длительностью 1,4 с – № 5121. В качестве рабочего газа использовался водород, разряд осуществлялся при постоянном статическом напуске газа с потоком, обеспечивающим начальное давление рабочего газа в вакуумной камере во время пробоя на уровне $1,8 \cdot 10^{-5}$ Торр [4]. Мощность омического нагрева для осуществления и поддержания УТС показана на рисунке 6д и определялась на основе данных с датчиков напряжения обхода и тока плазмы.

На рисунке 6 приведены сопоставления данных пирозлектрического болометра с данными электромагнитных диагностик (ток плазмы (6б), напряжение на обходе тора (6в)) и оптических диагностик (излучение линий $\text{H}\alpha$ (6е), СИИ (6з) и Hard X-ray (6и)), полученные во время плазменного разряда. Для вычисления полных радиационных потерь плазмы используется алгоритм, который учитывает расстояние от болометра к плазме, большой радиус плазмы, углы обзора болометра

Типичный регистрируемый сигнал пирозлектрического болометра приведен на рисунке 6а. Рисунок 6б иллюстрирует эволюцию тока плазмы. Пик на начальной стадии графика 6е связан с выбросом энергии при пробое рабочего газа (Н). В моменты времени $t = 2,3-2,5$ с сигнал на выходе с пирозлектрического болометра коррелируется с данными излучения линии углерода СИИ (рис. 6ж) и водорода $\text{H}\alpha$ (рис. 6з).

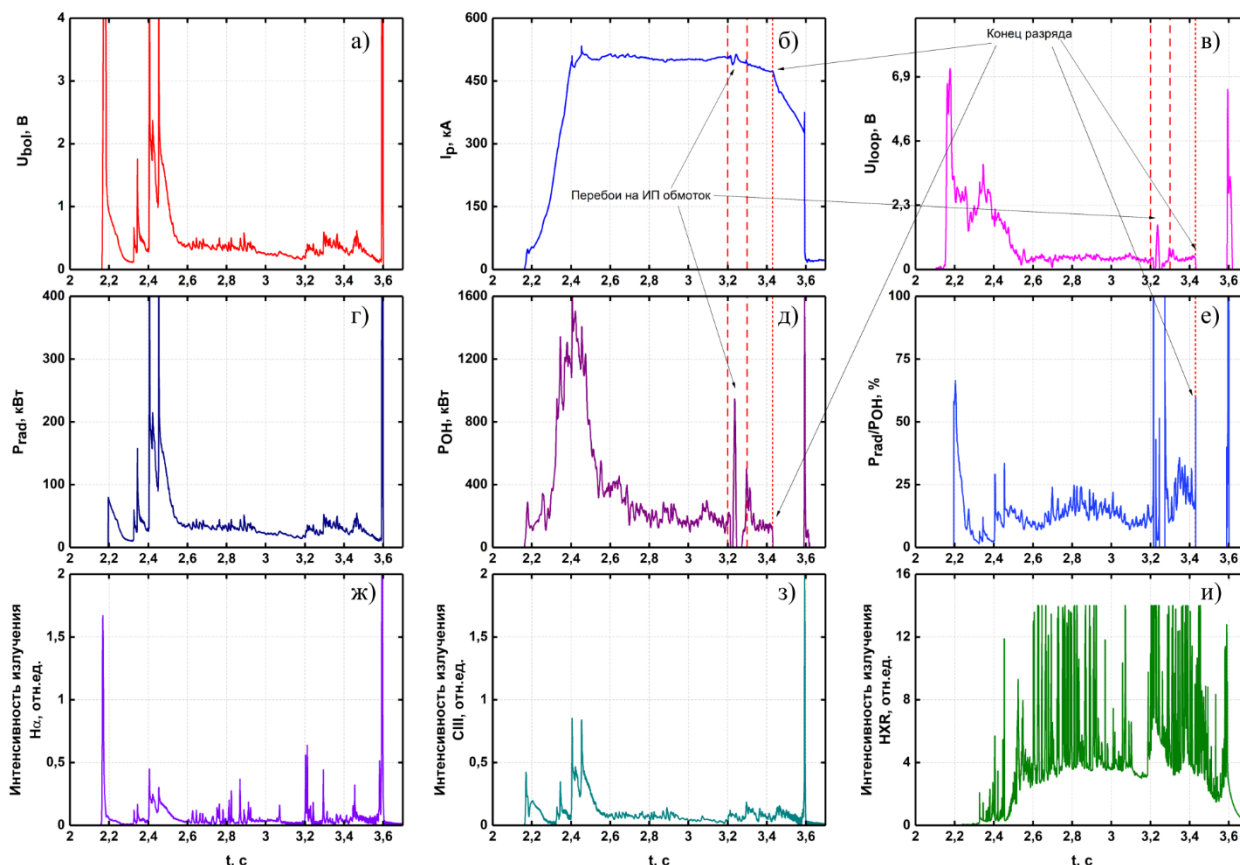


Рисунок 6. Набор сигналов диагностик токамака КТМ, разряд №5121

Всплески на графиках излучения были вызваны малыми срывами, при столкновении плазмы с первой стенкой вакуумной камеры в момент вывода тока плазмы на плато. Всплески на графиках датчика напряжения обхода (6в) и пояса Роговского (6б) в момент времени $t = 3,2\text{--}3,3$ с связаны с перебоями на внешних источниках электроснабжения.

Рисунок би демонстрирует жесткое рентгеновское излучение, возникающее при тормозном излучении плазмы из-за взаимодействия плазменного шнура со стенкой и последующим выходом графитовой пыли со стенок камеры [4]. Данное излучение связано с типом удержания плазмы, где в качестве лимитера выступает первая стенка вакуумной камеры.

К концу разряда, мощность радиационных потерь плазмы резко возрастает и большая часть запасенной в плазме энергии, излучается на стенку разрядной камеры. Мощность радиационных потерь на плато тока плазмы была на уровне 50 кВт и составила 10–30% от мощности омического нагрева (см. рисунок 6е). В ходе анализа разряда определено, что основным каналом радиационных потерь плазмы является излучение примесей углерода, возникающих при взаимодействии плазмы со стенками вакуумной камеры, выполненными из графита.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Были проведены работы по калибровке пирозлектрического болометра. Во время калибровки определены основные технические характеристики пирозлектрического болометра, такие как время быстрого действия 1 мс и коэффициент чувствительности $k = 27$ В/Вт. Получены экспериментальные данные, которые показали работоспособность диагностики в условиях токамака КТМ.

Проведен анализ зависимостей радиационных потерь плазмы, где определено, что на данный момент в плазменных разрядах мощность радиационных потерь плазмы зависит от поступления примесей углерода, налетающих со стенок вакуумной камеры, при взаимодействии плазмы с первой стенкой. Мощность радиационных потерь плазмы для плазменных разрядов, проводимых на токамаке КТМ, варьируется в пределах 10–30% от омической мощности. Для уменьшения радиационных потерь плазмы необходимо увеличить зазор между плазмой и первой стенкой вакуумной камеры. Также нанесение боруглеродных покрытий (процесс боронизации) на первую стенку увеличит качество и количество успешных плазменных разрядов и уменьшит мощность радиационных потерь плазмы.

Благодарность

Работа выполнена в рамках научно-технической программы BR23891779 «Научно-техническое обеспечение экспериментальных исследований на казахстанском материаловедческом токамаке КТМ» программно-целевого финансирования Министерства энергетики Республики Казахстан.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. <http://tokamak.info/> / All-the-Worlds-Tokamaks
2. Shimada M. Progress in the ITER Physics Basis / M. Shimada, D.J. Campbell, V. Mukhovatov // Nuclear Fusion. – 2007. – Т. 47. – P. S1–S17.
3. Шаповалов Г.В., Чектыбаев Б.Ж., Маусымбаев С.С., Купишев Е.Б., Сарычев Д.В. Диагностика радиацион-

ных потерь плазмы для физического пуска токамака КТМ на основе пьезоэлектрического детектора // Вестник НЯЦ. – 2016. – Вып. 4. – С. 124–129.

- [Shapovalov G.V., Chektybaev B.Zh., Mausymbaev S.S., Kupishev E.B., Sarychev D.V. Diagnostic of plasma radiation for start-up in tokamak KTM based pyroelectric sensor // NNC RK Bulletin. – 2016. – Issue 4(68). – P. 124–129.]
4. B. Chektybaev, S. Zhunisbek, I. Tazhibayeva, D. Olkhovik, E. Batyrbekov, D. Zarva, A. Korovikov, A. Lee, V. Pavlov, E. Kashikbayev, A. Zhaksybayeva, A. Duisen. Overview of the first experiments at KTM tokamak to obtain plasma discharges // Fusion Engineering and Design. – 2023. – Vol. 194. – P. 113847. <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2023.113847>

КТМ ТОКАМАКТАҒЫ ПЛАЗМАНЫҢ РАДИАЦИЯЛЫҚ ЖОҒАЛТУЛАРЫН ЗЕРТТЕУ

А. Ж. Дүйсен^{1*}, Б. Ж. Чектыбаев^{1,2}, Е. А. Кашикбаев^{1,2}, А. А. Жаксыбаева¹

¹⁾ ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

²⁾ Семей қаласының Шәкәрім атындағы университеті, Семей, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: duysen@nnc.kz

Бұл жұмыста шолу пьезоэлектрлік болометр көмегімен алынған КТМ токамактағы плазманың радиациялық шығынын өлшеу нәтижелері көрсетілген. КТМ токамак плазмасының радиациялық шығындарының диагностикасының техникалық ерекшеліктері мен орналасуы көрсетілген. Алғашқы эксперименттік нәтижелер көрсетілді, диагностиканың КТМ жағдайында өнімділігін көрсетті. Шектеу конфигурациясы бар омдық қыздыру режимінде плазмалық сәулелену шығынының жалпы қуаты есептелді.

Түйін сөздер: плазма, токамак, КТМ, плазманың радиациялық шығыны, болометр.

STUDY OF PLASMA RADIATION LOSSES IN THE KTM TOKAMAK

A. Zh. Duysen^{1*}, B. Zh. Chektybaev^{1,2}, E. A. Kashikbaev^{1,2}, A. A. Zhaksybaeva¹

¹⁾ Branch “Institute of Atomic Energy” RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

²⁾ University named after Shakarim of Semey, Semey, Kazakhstan

* E-mail for contacts: duysen@nnc.kz

This paper presents the results of plasma radiation loss measurements in the KTM tokamak obtained using a survey pyroelectric bolometer. The technical features and placement of the diagnostics of the KTM tokamak plasma radiation losses are presented. The first experimental results are demonstrated, which showed the operability of the diagnostics under KTM conditions. The total power of plasma radiation losses is calculated in the ohmic heating mode with a limiter configuration.

Keywords: plasma, tokamak, KTM, plasma radiation losses, bolometer.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-101-107>

УДК 575.224.23: 633.274:539.16 (574.41)

ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО И ХИМИЧЕСКОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ НА ЦИТОГЕНЕТИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ ВЕЙНИКА НАЗЕМНОГО (*CALAMAGROSTIS EPIGEJOS*)

К. С. Минкенова*, Н. К. Нургайсинова, Н. В. Ларионова, М. Т. Дюсембаева, Л. А. Немытова

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

* E-mail для контактов: minkanova@nnc.kz

В статье представлены результаты исследования влияния радионуклидного и химического загрязнения на цитогенетические показатели вейника (*Calamagrostis epigëjos*) произрастающего на горном массиве Дегелен Семипалатинского испытательного полигона. Выявлено комбинированное влияние ионизирующего излучения и концентрации химических элементов в растениях. При увеличении дозы облучения от $5,0 \cdot 10^{-6}$ до $2,5 \cdot 10^{-5}$ Гр/ч наблюдается незначительные изменения – увеличение частоты аберрантных клеток меристемных корешков проростков семян вейника (*Calamagrostis epigëjos*), однако все изменения находятся в пределах погрешности. Достаточно четкая зависимость изменения частоты аберрантных клеток от концентрации элементов отмечается только для Cd и Sr. Определенная тенденция изменения частоты аберрантных клеток отмечается при увеличении содержания Mn. Остальные элементы при имеющихся уровнях концентрации в растениях не оказывают значимого влияния на их цитогенетические показатели. В целом, максимальная частота аберрантных клеток составляет порядка 8,8%. При этом, у растений выявлены хромосомные, хроматидные и геномные типы хромосомных нарушений.

Ключевые слова: Семипалатинский испытательный полигон (СИП), радионуклиды, токсичные элементы, растения, хромосомные aberrации.

ВВЕДЕНИЕ

Степень негативного воздействия на природную среду резко возрастает, если в ней одновременно присутствуют несколько загрязняющих веществ разного генезиса. Проведенные исследования показали, что помимо радиоактивных загрязнений на Семипалатинском испытательном полигоне (СИП) существуют участки с высоким содержанием токсичных элементов, которые являются канцерогенами, а также вызывают генные мутации и изменения на клеточном уровне, аналогично ионизирующему излучению. Испытания ядерного оружия, проведенные в штольнях горного массива Дегелен с 1961 по 1989 год, привели к радиационному загрязнению окружающей среды [1]. Одним из наиболее загрязненных участков в пределах горного массива «Дегелен» является экосистема водотока из штольни № 504, которая расположена долине ручья Карабулак. Припортовая площадка этой штольни характеризуется высоким содержанием ряда элементов и радионуклидов [2]. Удельные активности радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr в растениях, произрастающих в данной экосистеме, лежат в диапазоне $n \cdot 10^3$ – $n \cdot 10^4$ Бк/кг [3]. Концентрация химических элементов в растениях, произрастающих в районе штольни № 504, отражает элементный состав почвы. На данном участке выявлены повышенные содержания таких элементов, как Be, Mn, Cu, Zn, Mo, Cd, Cs, Pb и U, превышающие показатель кларка литосферы [4]. По данным авторов [5] повы-

шенные концентрации редкоземельных элементов в почве в районе штольни № 504 связаны с выносом тяжелых металлов с водами водотока данной штольни. В связи с вышеизложенным, экосистема водотока из штольни № 504 представляет интерес с точки зрения оценки возможного влияния радиационных и химических факторов на популяции растений, произрастающих в данной экосистеме.

Таким образом целью исследований являлась оценка влияния радионуклидного и химического загрязнения на цитогенетические показатели растений, на примере одного из доминантных видов, произрастающих в этой экосистеме – вейника (*Calamagrostis epigëjos*).

1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

1.1. Отбор проб

Отбор проб проведен в 10 точках, расстояние между которыми вдоль русла водотока составило 50 м, согласно представленной схеме (рисунок 1). Каждая исследовательская точка представляла собой участок площадью 1 м². В качестве опытного растения выбран вейник (*Calamagrostis epigëjos*).

Для цитогенетических исследований отобраны семена растения с каждой исследовательской точки. Остальная надземная часть растений с 1 м² отбиралась методом укоса для радионуклидного и элементного анализов.

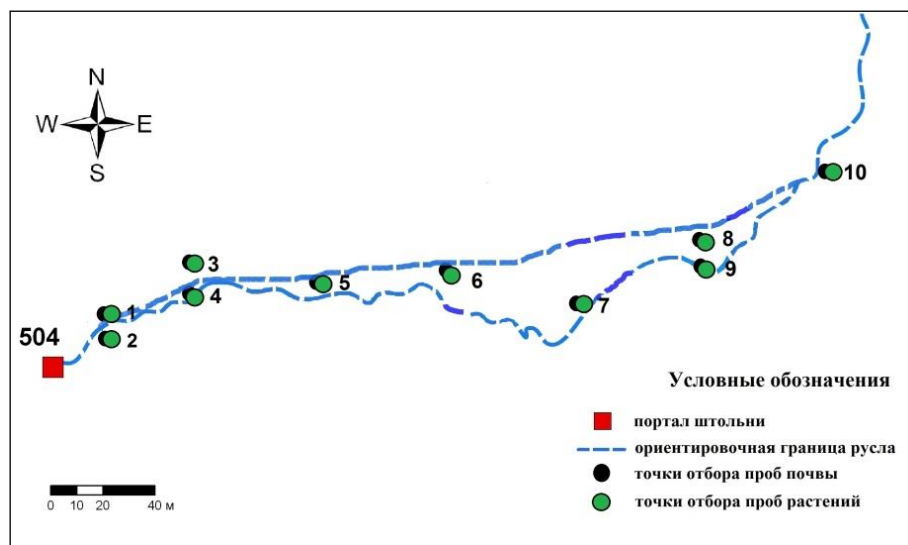


Рисунок 1. Схема точек отбора образцов

1.2. Определение содержания радионуклидов в растениях

Пробы растений промывались проточной, затем дистиллированной водой, измельчались, высушались при температуре 105 °С в сушильном шкафу Binder (Германия), затем перемалывали до состояния травяной муки с использованием лабораторной мельницы ИКА (Германия). После измельчения пробы озонялись в муфельной печи Nabertherm (Uthvfybz). Температура озонения проб растительного происхождения для определения ^{137}Cs составляла 400 °С, ^{90}Sr , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ – 500 °С.

Определение удельной активности радионуклидов ^{137}Cs и ^{241}Am проводили на γ -спектрометре Canberra (США) с германиевым детектором (BE 2020) [6]. Измерения проводили в соответствии с методикой выполнения измерений на γ -спектрометре. Определение радионуклида ^{90}Sr в пробах растений проводили на β -спектрометре «Прогресс» в сухой навеске [7]. Изотопы $^{239+240}\text{Pu}$ определяли после предварительного радиохимического выделения, с последующим измерением на альфа-спектрометре Canberra, мод. 7401. (США) [8]. Предел обнаружения по ^{137}Cs составлял 1 Бк/кг, ^{241}Am – 0,02 Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – 0,1 Бк/кг, ^{90}Sr – 100 Бк/кг. Погрешность измерений для ^{137}Cs и ^{241}Am в основном не превышала 10–20%, ^{90}Sr – 15–25%, $^{239+240}\text{Pu}$ – 30%.

1.3. Определение содержания тяжелых металлов в растениях

Подготовка проб растений к элементному анализу проводили методом автоклавного разложения согласно рабочей инструкции [9]. Определение концентраций элементов проводили методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой на приборе «Elan 9000» фирмы «Perkin Elmer SCIEX» [10].

1.4. Расчет дозы

Методология оценки дозы облучения биоты дос-

таточно подробно изложена в публикации МКРЗ № 108 [11]. Выделяются несколько видов организмов, проживающих в воде, в земле и над землей. В нашем случае интерес представляет дикорастущая трава и злаки.

Мощность дозы внутреннего или внешнего облучения наземных растений рассчитана как произведение удельной активности радионуклида в растении на соответствующий дозовый коэффициент [11],

$$D = A \cdot DCC,$$

где A – удельная активность сырой пробы растения или удельная активность подстилающей почвы (Бк/кг); DCC – дозовый коэффициент внутреннего или внешнего облучения (мкГр·кг/ч/Бк).

1.5. Цитогенетическое исследование растительных образцов

Воздушно-сухие семена растений раскладывали на влажную фильтровальную бумагу в чашках Петри. Проращивание семян проводилось в термостате MIR-253 при температуре 18–25 °С. Проросшие семена, у которых главный корешок имел длину не менее длины семени, фиксировали в фиксаторе Кларка.

Для приготовления «давленных» препаратов проводилась мацерация растительной ткани, затем корешки помещались в краситель. В качестве красителя растительной ткани использовался специально приготовленный ацетоорсеин. Цитогенетический анализ проводился с использованием микроскопа Axio Imager M2 при увеличении объектива $\times 100$ (масляная иммерсия) $\times 40$ и $\times 10$.

В ходе цитогенетических исследований проводился анализ частоты хромосомных аберраций в апикальной меристеме корешков прорастающих семян вейника (*Calamagrostis epigjos*). При анализе учитывались такие аномалии как мосты, фрагменты, отстающие хромосомы и митотические аномалии. В процессе лабораторных исследований руководствова-

**ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО И ХИМИЧЕСКОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ НА ЦИТОГЕНЕТИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ
ВЕЙНИКА НАЗЕМНОГО (*CALAMAGROSTIS EPIGEJOS*)**

лись, методикой проведения цитогенетического анализа хромосом в первом митозе меристемных корешков прорастающих семян растений согласно методике [12].

Содержание радионуклидов в растениях. В таблице 1 представлены данные результатов радионуклидного анализа растений: естественные радионуклиды ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th и техногенные радионуклиды ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr .

Удельная активность радионуклидов в основном ниже предела обнаружения. Максимально высокие значения удельной активности установлены для ра-

дионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr , составляющие наибольшую мощность дозы внутреннего облучения. Удельная активность радионуклида ^{137}Cs в исследуемых растениях варьирует от $1,7 \cdot 10^3$ до $7,3 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{90}Sr от $7,0 \cdot 10^3$ до $9,9 \cdot 10^4$, ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ – находится ниже предела обнаружения используемой аппаратуры.

Содержание элементов в растениях. Концентрации элементов в образцах растений представлены в таблице 2. В результате элементного анализа выявлено, что из 21 исследуемого элемента для 15 наблюдаются превышения кларковых концентраций в растениях.

Таблица. 1. Удельная активность радионуклидов в растениях

Номер точки	Удельная активность радионуклидов, Бк/кг						^{137}Cs ($n \cdot 10^4$)	^{90}Sr ($n \cdot 10^4$)
	^{40}K	^{226}Ra	^{232}Th	^{241}Am	$^{239+240}\text{Pu}$			
1	170±30	19±4	47±9	<2	1,9±0,8		2,0±0,4	2,8±0,38
2	260±50	<4	8±4	<5	2,2±1,0		0,17±0,03	1,0±0,2
3	<75	<8	33±7	<15	<0,4		6,3±1,3	0,7±0,1
4	310±60	<7	24±5	<6	<1,6		7,3±1,5	2,4±0,03
5	<50	<6	<6	<4,5	<0,2		2,1±0,4	1,6±0,3
6	160±30	<7	<6	<5,4	<0,4		2,0±0,4	0,74±0,1
7	230±50	<9	<7	<8,7	<0,5		3,5±0,7	0,92±0,2
8	300±60	<4	<3	<6,9	2,3±0,1		5,0±0,7	6,4±0,1
9	190±40	<4	11±3	<4,9	2,6±1,9		0,69±0,14	9,9±0,2
10	170±30	4±2	<3	<3,3	2,1±1,0		1,1±0,2	0,73±0,2
ПДК	не нормируется						0,0074	0,0111

Табл. 2. Концентрации химических элементов в растениях

Элемент	Концентрации элементов, мкг/г										Диапазон нормальных концентраций [13], мкг/г	Средняя концентрация элементов [14], мкг/г
	Номера точек											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10		
Al	360	240	–	490	–	360	140	130	200	150	до 200	–
Cr	5,7	6,0	–	3,2	–	2,6	4,4	5,3	5,3	5,1	0,1–0,5	1,8
Zn	120	140	–	170	–	130	160	40	73	75	27–150	30
Cd	0,6	1,2	–	0,6	–	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,05–0,2	0,035
Pb	7,1	7,5	–	6,1	–	3,2	2,7	1,7	9,5	3,2	5,0–10	1,25
Sr	64	34	8,0	31	31	12	12	10	13	12	6,0–37	35
U	9,1	0,8	–	1,7	–	1,8	1,1	2,0	2,9	1,2	0,005-0,069	0,02
Cu	10	35	–	5,9	–	8,5	8,7	3,7	9,9	3,4	5,0–20	8,0
Mn	970	1540	–	1450	–	1430	1580	1500	2100	1730	20–300	205
Be	3,8	1,9	2,8	4,0	7,4	3,9	2,1	3,4	3,2	2,9	1,0–7,0	0,10
Li	6,8	21	1,5	2,9	1,8	1,6	62	2,3	10	3,9	до 3,0	1,5
Co	0,4	0,4	–	0,4	–	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,02–1,0	0,5
Ni	4,4	3,6	–	2,9	–	2,3	3,3	3,1	3,5	3,2	0,1–5,0	2,0
Rb	6,1	4,1	17	13	9,3	14	17,0	15	7,1	7,7	20–70	5,0
Y	2,5	0,8	–	1,4	–	1,3	0,5	0,9	1,5	0,5	0,2–7,5	0,8
La	2,7	0,7	–	1,6	–	1,4	0,6	1,0	1,5	0,5	0,10–0,17	0,8
Ce	4,8	0,9	–	2,5	–	2,1	0,8	1,5	2,3	0,7	0,20–0,33	–
Nd	2,1	0,4	–	1,0	–	0,8	0,3	0,6	0,9	0,2	0,5–0,15	–
Sm	0,5	0,1	–	0,2	–	0,2	0,1	0,1	0,2	0,1	0,02–0,04	–
Fe	330	200	–	600	–	460	360	95	310	200	50–100	–
Gd	0,7	0,1	–	0,3	–	0,3	0,1	0,2	0,3	0,1	0,02–0,04	–

Примечание: – не нормируется

Табл. 3. Частота и спектр цитогенетических нарушений в проростках растения вейник (*Calamagrostis epigaeos*)

№ точки	Просмотрены и изучены				Количество aberrаций							Ана-телофаза с aberrациями хромосом, %±m
	Кол-во корешков	Кол-во ана-телофазных клеток	Аберрантные клетки	Общее число aberrаций	m ^I	m ^{II}	f ^I	f ^{II}	g	s	3p	
1	20	139	3	3	–	1	–	–	2	–	–	2,2±1,2
2	7	161	2	2	–	–	–	–	2	–	–	1,2±0,9
3	11	282	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
4	40	446	6	6	3	1	1	1	–	–	–	1,3±0,5
5	40	300	12	12	–	2	4	3	1	2	–	4,0±1,1*
6	33	443	14	14	5	1	3	–	2	3	–	3,2±0,8
7	26	183	5	6	3	1	–	2	–	–	–	3,0±1,3
8	8	127	5	6	1	–	2	–	1	2	–	4,0±1,0
9	35	532	47	48	16	9	11	4	3	4	1	8,8±1,2***
10	39	411	35	44	12	5	9	5	3	9	1	8,5±1,4***

Примечание: f^I и f^{II} – одиночные и двойные фрагменты; m^I и m^{II} – одиночные и двойные мосты; g – отставания хромосом; s – забегавшая хромосома; 3p – трехполосный митоз. Достоверное отличие от контроля: * – p<0,05, *** – p<0,001

По представленным в таблице 2 данным видно, что содержание лантаноидов в исследуемых образцах превышает нормальные встречающиеся в природе концентрации в 30–50 и более раз, U примерно в 25–260, Li, Cr – в 10–20, Mn, Cd, Al – в 2–10 раз.

Оценка дозовых нагрузок. Полученные значения суммарных мощностей доз внутреннего облучения растений от всех радионуклидов представлены на рисунке 2.

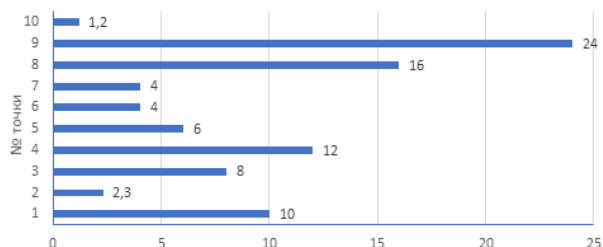


Рисунок 2. Мощности доз внутреннего облучения растений

Согласно полученным данным, видно, что поглощенная вейником (*Calamagrostis epigaeos*) доза варьирует в диапазоне от 1,2 мкГр/ч до 24 мкГр/ч на различных участках отбора.

Частота аберрантных клеток. Всего из семян вейника (*Calamagrostis epigaeos*) подготовлено 259 постоянных препаратов. Количество изученных ана-телофазных клеток составило 3024. В таблице 3 представлены цитогенетические показатели исследуемых растений.

На загрязненной точке (таб. №№1 и 2, № 9 точка) максимальная частота аберрантных клеток составляет 8,8±1,2%, в менее загрязненных точках частота аберрантных клеток находилась в диапазоне 1,2±0,9%, что близко к типичному диапазону спонтанной частоты аберрантных клеток для многих дикорастущих и культурных злаков (0,5-1,0 %) [15]. Об-

наружены следующие типы нарушений одиночные и двойные мосты, одиночные и двойные фрагменты, митотические нарушения (забегания, отставания хромосом, трехполосные митозы). В некоторых клетках обнаружено присутствие сразу нескольких типов нарушений. Выявлены хромосомные, хроматидные и геномные типы мутаций, что свидетельствует о влиянии химических элементов и ионизирующего излучения.

Зависимость цитогенетических показателей растений от дозы облучения

На основе данных, полученных в результате проведения цитогенетических исследований и расчета внутренней доз облучения. Построен график изменения некоторых цитогенетических показателей вейника (*Calamagrostis epigaeos*) от дозы облучения за период жизни растения до момента отбора (около 5 месяцев) (рисунок 2).

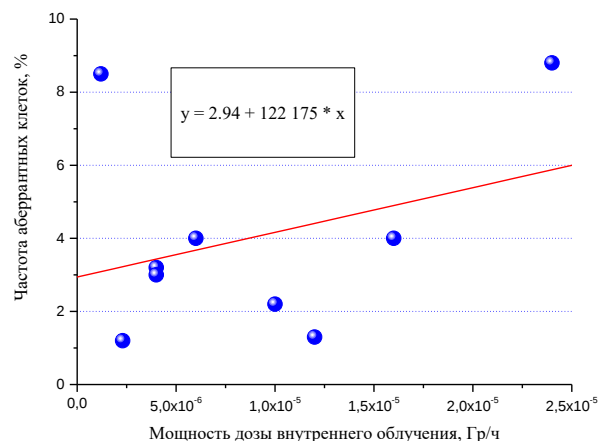


Рисунок 2. Изменение частоты аберрантных клеток от дозы облучения

При увеличении дозы облучения от $5,0 \cdot 10^{-6}$ до $2,5 \cdot 10^{-5}$ Гр/ч наблюдается тенденция к увеличению частоты аберрантных клеток меристемных корешков проростков семян вейника (*Calamagrostis epigæjos*). Однако в дозе меньше $5,0 \cdot 10^{-6}$ Гр/ч в точке № 10 отмечается повышенная частота аберрантных клеток, что свидетельствует влияние других факторов в том числе токсичных элементов. Это подтверждается данными, приведенными в таблицах 2 и 3 для исследовательской точки № 10.

Зависимость цитогенетических показателей растений от содержания токсичных элементов

Химические элементы и тяжелые металлы, также, как и ионизирующее излучение, индуцируют все типы мутаций [16, 17]. По результатам проведенных

исследований установлено, что наибольшее влияние на цитогенетическую структуру данного вида растений на исследованной территории оказывают токсичные элементы. Установлены определенные зависимости цитогенетических показателей от содержания в них отдельных элементов (рисунок 3).

Достаточно четкая зависимость изменения частоты аберрантных клеток от концентрации элемента отмечается только для Cd и Sr. Определённая тенденция изменения частоты аберрантных клеток отмечается при увеличении содержания Mn. Остальные элементы при имеющихся уровнях концентрации в растениях не оказывают значимого влияния на их цитогенетические показатели.

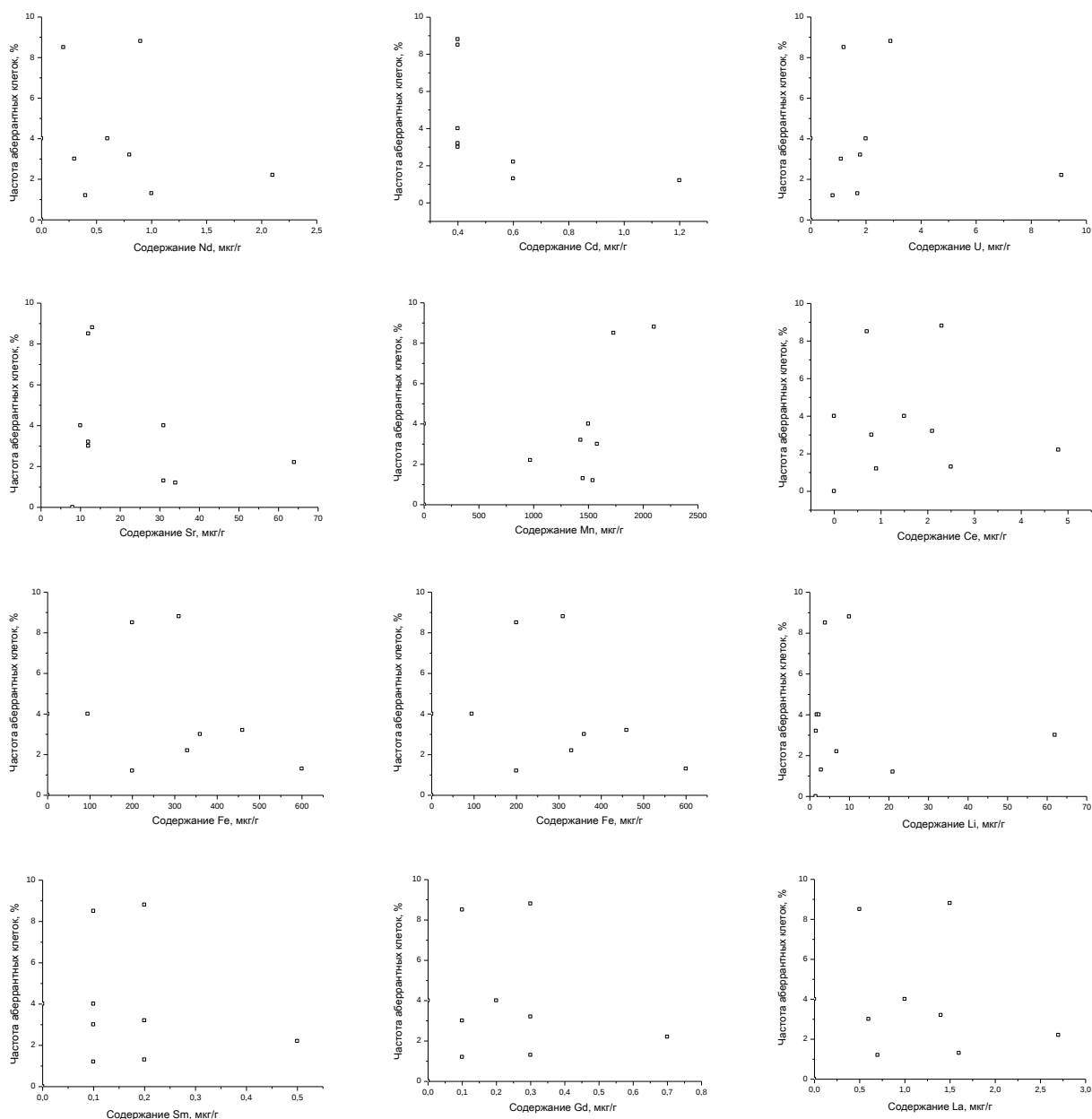


Рисунок 3. Изменение частоты аберрантных клеток от токсичных элементов и тяжелых металлов

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных работ установлено, комбинированное влияние ионизирующего излучения и концентрации химических элементов на цитогенетические эффекты растений. Основной вклад в суммарную мощность дозы внутреннего облучения растений вносят радионуклиды ^{137}Cs и ^{90}Sr . При увеличении дозы облучения от $5,0 \cdot 10^{-6}$ до $2,5 \cdot 10^{-5}$ Гр/ч наблюдается линейная зависимость увеличения частоты аберрантных клеток меристемных корешков проростков семян вейника (*Calamagrostis epigejos*). Достаточно четкая зависимость изменения частоты аберрантных клеток от концентрации элементов отмечается только для Cd и Sr. Определенная тенденция изменения частоты аберрантных клеток отмечается при увеличении содержания Mn. Остальные элементы при имеющихся уровнях концентрации в растениях не оказывают значимого влияния на их цитогенетические показатели. Максимальная частота аберрантных клеток составляет порядка 8,8%. Выявлены хромосомные, хроматидные и геномные типы хромосомных нарушений.

Данные исследования финансировались Министерством энергетики Республики Казахстан в рамках научно-технической программы «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» (ИРН – BR24792713).

ЛИТЕРАТУРА

1. Семипалатинский испытательный полигон. Создание, деятельность, конверсия / кол. авторов под рук. В.С. Школьника. – Алматы: Казахстан. – 2003.
2. Геохимический фон СИП. Микроэлементы в почвах участков, прилегающих к горному массиву Дегелен / А.А. Амиров, С.Н. Лукашенко, С.Б. Субботин, В.Д. Кириллов, В.П. Солодухин, Н.М. Бердинова, Д.А. Желтов // Актуальные вопросы радиэкологии Казахстана: Вып. 2 Сборник трудов Института радиационной безопасности и экологии за 2007–2009 гг. – Павлодар: Дом печати. – 2010. – С. 451–460.
3. Под редакцией Лукашенко С.Н., Сборник трудов Института радиационной безопасности и экологии за 2007–2009 гг. ДГП Институт радиационной безопасности и экологии РГП НЯЦ РК. – 2010, – С. 451–460.
4. Шакинов Е.З и др. Пространственное распределение химических элементов в водотоке штольни 504 площадки «Дегелен» // Известия Томского политехнического университета. Инженеринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 9. – С. 70–83.
5. Факторы формирования загрязнения тяжелыми металлами припортовых участков площадки «Дегелен» / А.А. Амиров, С.Н. Лукашенко // Актуальные вопросы радиэкологии Казахстана: Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2011 г. – Павлодар: Дом печати. – 2011. – Вып. 3. – Т. 2. – С. 295–317.
6. Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре: МИ 2143-91; МИ 5.06.001.98 РК. – Алматы. – 1998. – 18 с.

7. Методика измерения активности радионуклидов с использованием сцинтилляционного бета-спектрометра с программным обеспечением «Прогресс». – Менделеево. – 2004. – 20 с.
8. Методика определения содержания искусственных радионуклидов плутония-(239+240), стронция-90 в объектах окружающей среды. – Алматы. – 2010. – 25 с.
9. Подготовка проб для элементного анализа методом автоклавного разложения. Рабочая инструкция. РИ 03-02-03 (А). Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК. – 2014. – 12 с.
10. Рабочая инструкция. Проведение элементного анализа проб растений методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой на масс-спектрометре ELAN 9000. – Курчатов. – 2018. – 25 с.
11. Environmental Protection: the Concept and Use of Reference Animals and Plants. 208. ICRP 108.
12. Паушева З. В. Практикум по цитологии растений. – М.: Колос. – 1980. – 225 с.
13. Кабата-Пендиас. А. Микроэлементы в почвах и растениях / А. Кабата-Пендиас, Х. Пендиас [пер. с англ.]. – М.: Мир. – 1989. – 439 с.
14. Добровольский С.В. Основы биогеохимии. / В.С. Добровольский / М.: Академия. – 2003. – 400 с.
15. Geras'kin S., Evseeva T., Oudalova A. Plants as a tool for the environmental health assessment. Encyclopedia of Environmental Health. Second edition. Elsevier. – 2019. – Vol. 5. – P. 239–248.
16. Рупошаев А.Р. Цитогенетический эффект ионов тяжелых металлов на семена *Crepis capilaris* L // Генетика/ – 1976. – Т. 12. – №3. – С. 37–43.
17. Моссэ И.Б. О различной модифицируемости выхода точковых и структурных радиационных мутаций у эукариот // Радиобиология. – М.: Наука. – 1982. – Т. 22. – С. 329–333.

REFERENCES

1. Semipalatinskiy ispytatel'nyy poligon. Sozdanie, deyatel'nost', konversiya / kol. avtorov pod ruk. V.S. Shkol'nika. – Almaty: Kazakhstan. – 2003.
2. Geokhimicheskiy fon SIP. Mikroelementy v pochvakh uchastkov, prilegayushchikh k gornomu massivu Degelen / A.A. Amirov, S.N. Lukashenko, S.B. Subbotin, V.D. Kirillov, V.P. Solodukhin, N.M. Berdinova, D.A. Zheltov // Aktual'nye voprosy radioekologii Kazakhstana: Issue 2 Sbornik trudov Instituta radiatsionnoy bezopasnosti i ekologii za 2007–2009 gg. – Pavlodar: Dom pechati. – 2010. – P. 451–460.
3. Pod redaktsiey Lukashenko S.N., Sbornik trudov Instituta radiatsionnoy bezopasnosti i ekologii za 2007–2009 gg. DGP Institut radiatsionnoy bezopasnosti i ekologii RGP NYaTs RK. – 2010, – P. 451–460.
4. Shakenov E.Z i dr. Prostranstvennoe raspredelenie khimicheskikh elementov v vodotoke shtol'ni 504 ploshchadki «Degelen» // Izvestiya Tomskogo politekhnicheskogo universiteta. Inzhenering georesursov. – 2020. – Vol. 331. – No. 9. – P. 70–83.
5. Faktory formirovaniya zagryazneniya tyazhelymi metallami priportal'nykh uchastkov ploshchadki «Degelen» / A.A. Amirov, S.N. Lukashenko // Aktual'nye voprosy radioekologii Kazakhstana: Sbornik trudov Natsional'nogo yadernogo tsentra Respubliki Kazakhstan za 2011 g. – Pavlodar: Dom pechati. – 2011. – Issue 3. – Vol. 2. – P. 295–317.

6. Aktivnost' radionuklidov v ob'emnykh obraztsakh. Metodika vypolneniya izmereniy na gamma-spektrometre: MI 2143-91; MI 5.06.001.98 RK. – Almaty. – 1998. – 18 p.
7. Metodika izmereniya aktivnosti radionuklidov s ispol'zovaniem stsintillyatsionnogo beta-spektrometra s programmym obespecheniem "Progress". – Mendeleevo. – 2004. – 20 p.
8. Metodika opredeleniya sodержaniya iskusstvennykh radionuklidov plutoniya-(239+240), strontsiya-90 v ob'ekтах okruzhayushchey sredy. – Almaty. – 2010. – 25 p.
9. Podgotovka prob dlya elementnogo analiza metodom avtoklavnogo razlozheniya. Rabochaya instruktsiya. RI 03-02-03 (A). – Kurchatov: IRBE NYaTs RK. – 2014. – 12 p.
10. Rabochaya instruktsiya. Provedenie elementnogo analiza prob rasteniy metodom mass-spektrometrii s induktivno svyazannoy plazmoy na mass-spektrometre ELAN 9000. – Kurchatov. – 2018. – 25 p.
11. Environmental Protection: the Concept and Use of Reference Animals and Plants. 208. ICRP 108.
12. Pausheva Z. V. Praktikum po tsitologii rasteniy. – Moscow: Kolos. – 1980. – 225 p.
13. Kabata-Pendias. A. Mikroelementy v pochvakh i rasteniyakh / A. Kabata-Pendias, Kh. Pendia [per. s angl.]. – Moscow: Mir. – 1989. – 439 p.
14. Dobrovol'skiy S.V. Osnovy biogeokhimii. / V.S. Dobrovol'skiy / Moscow: Akademiya. – 2003. – 400 p.
15. Geras'kin S., Evseeva T., Oudalova A. Plants as a tool for the environmental health assessment. Encyclopedia of Environmental Health. Second edition. Elsevier. – 2019. – Vol. 5. – P. 239–248.
16. Ruposhaev A.R. Tsitogeneticheskiy effekt ionov tyazhelykh metallov na semena Crepis capilaris L // Genetika/ – 1976. – Vol. 12. – No. 3. – P. 37–43.
17. Mosse I.B. O razlichnoy modifitsiruemosti vykhoda tochkovykh i strukturnykh radiatsionnykh mutatsiy u eukariot // Radiobiologiya. – Moscow: Nauka. – 1982. – Vol. 22. – P. 329–333.

РАДИОНУКЛИДТІК ЖӘНЕ ХИМИЯЛЫҚ ЛАСТАНУДЫҢ ҚҰРҒАҚ АЙРАУЫҚТЫҢ (*CALAMAGROSTIS EPIGEJOS*) ЦИТОГЕНЕТИКАЛЫҚ ПАРАМЕТРЛЕРІНЕ ӘСЕРІН БАҒАЛАУ

К. С. Минкенова*, Н. К. Нургайсинова, Н. В. Ларионова, М. Т. Дюсембаева, Л. А. Немытова

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

* Байланыс үшін E-mail: minkanova@nnc.kz

Мақалада Семей сынақ полигонының Дегелең тау жотасында өсетін құрғақ айрауықтың (*Calamagrostis epigéjos*) цитогенетикалық көрсеткіштеріне радионуклидтік және химиялық ластанудың әсерін зерттеу нәтижелері келтірілген. Ионды сәуле шығарудың және өсімдіктердегі химиялық элементтердің шоғырлануының біріктірілген әсері анықталды. Сәуле шығару дозасы $5,0 \cdot 10^{-6}$ бастап $2,5 \cdot 10^{-5}$ Гр/сағ-қа дейін ұлғайған кезде болмашы өзгерістер – құрғақ айрауық (*Calamagrostis epigéjos*) тұқымының өскіндерінің меристемалық тамырларында аберрантты жасушаларының жиілігінің жоғарылауы байқалады, алайда барлық өзгерістер дәлсіздік шегінде орын алады. Зерттеліп жатқан өсімдіктерде ШРШ жоғарылауы Cr, Mn, Li, Fe сияқты элементтердің шоғырлануы олардың құрамы ұлғайған кезде аберрантты жасушалар жиілігінің белгілі бір өзгерістері байқалады. Жалпы, аберрантты жасушалардың максималды жиілігі шамамен 8,8% құрайды. Сонымен қатар, өсімдіктерде хромосомалық бұзылулардың хромосомалық, хроматидтік және геномдық түрлері анықталды.

Кілт сөздер: Семей сынақ полигоны, радионуклидтер, зиянды элементтер, өсімдік, хромосомалық ауытқулар.

ASSESSMENT OF THE EFFECT OF RADIONUCLIDE AND CHEMICAL CONTAMINATION ON THE CYTOGENETIC PARAMETERS OF THE BUSH GRASS (*CALAMAGROSTIS EPIGEJOS*)

K. S. Minkanova*, N. K. Nurgaisinova, N. V. Larionova, M. T. Dyusembayeva, L. A. Nemytova

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

* E-mail for contacts: minkanova@nnc.kz

The article presents the study results of the effect of radionuclide and chemical contamination on the cytogenetic parameters of the bush grass (*Calamagrostis epigéjos*) growing on the Degelen mountain massif of the Semipalatinsk Test Site. The combined effect of ionizing radiation and the concentration of chemical elements in plants has been revealed. With an increase in the radiation dose from $5.0 \cdot 10^{-6}$ to $2.5 \cdot 10^{-5}$ Gy/h, minor changes are observed – an increase in the frequency of aberrant cells of meristematic rootlets of seedlings of bush grass (*Calamagrostis epigéjos*), however, all changes are within the margin of error. Certain changes in the frequency of aberrant cells are noted with an increase in the content of elements such as Cr, Mn, Li, Fe, the concentrations of which in the studied plants increase the MPC. In general, the maximum frequency of aberrant cells is about 8.8%. At the same time, chromosomal, chromatid and genomic types of chromosomal disorders were detected in plants.

Keywords: Semipalatinsk test site, radionuclides, toxic elements, plants, chromosomal aberrations.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-108-112>

УДК 575.224.23: 633/635:546.11.027*3 (282.247.423.4)

ССП АУМАҒЫНДА ӨСЕТІН АҚ ШИДІҢ (*ACHNATHERUM SPLENDENS*) ЦИТОГЕНЕТИКАЛЫҚ ПАРАМЕТРЛЕРІ

К. С. Минкенова*, А. В. Паницкий, А. Н. Мамырбаева

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

* Байланыс үшін E-mail: minkanova@nnc.kz

Өсімдіктердің цитогенетикалық көрсеткіштеріне ^3H радионуклидінің ықтимал әсерін зерттеу үшін құрамында ^3H радионуклидінің мөлшері жоғары жер асты сулары көтерілетін аймақта өсетін өсімдіктерді зерттеулер жүргізілді. Шидің (*Achnatherum splendens*) цитогенетикалық көрсеткіштері зерттелінді. Өсімдіктердің цитогенетикалық құрылымына ^3H радионуклидінің әсері бағаланды. Зерттеу барысында осы экспериментте зерттелген концентрация аясында шидің (*Achnatherum splendens*) цитогенетикалық құрылымына ^3H радионуклидінің әсері анықталды.

Түйін сөздер: ^3H радионуклиді, хромосомалық аберрациялар, ақ ши, Шаған өзені.

КІРІСПЕ

Семей сынақ полигонының (ССП) аумағындағы жалғыз жер үсті су ағыны – Шаған өзені Ертіс өзенінің (өз.) сол жағалауы болып табылады. 15.01.1965 ж. термоядролық жарылыс нәтижесінде Шаған өз. мен Ащысу өз. түйіскен жерінде «Атом көлі» жасанды су қоймасы пайда болды [1–3]. Шаған өз. радиоактивті ластануы «Балапан» алаңында жүргізілген жерасты ядролық сынақтарына байланысты түзілді. Шаған өз. суларында ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{90}Sr радионуклидтердің үлестік белсенділігі өлшеу аппаратурасының анықтау шегінен төмен [4]. Шаған өз. суларындағы ^3H радионуклидінің жоғары үлестік белсенділігі «Атом көлінен» 5 км төменірек жерде анықталды [5].

Сондықтан экожүйе құрамбөліктерінің ^3H радионуклидімен ластануы мәселесі өткір болып тұр.

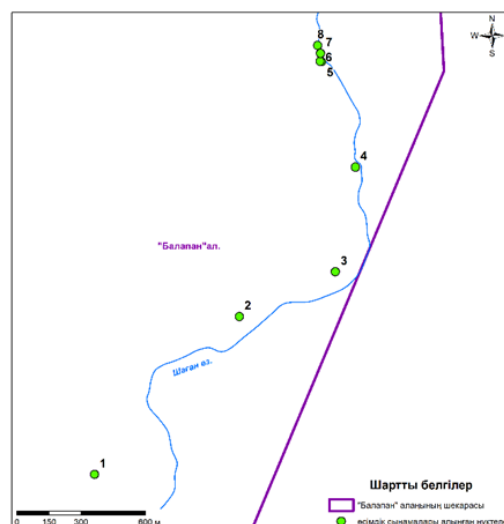
Зерттеудің негізгі мақсаты Шаған өз. бойындағы суда және жағалау өсімдіктерінде ^3H радионуклиді жоғары мөлшерде шоғырланған аймақта өсетін ақ шидің (*Achnatherum splendens*) цитогенетикалық көрсеткіштеріне ^3H радионуклидінің ықтимал әсерін зерттеу болып табылады.

1. ЗЕРТТЕУ МАТЕРИАЛДАРЫ МЕН ӘДІСТЕРІ

1.1. Тәжірибелік-эксперименттік учаскені таңдау

Бұрын алынған мәліметтер негізінде Шаған өз. аймағындағы өсімдіктердің цитогенетикалық көрсеткіштерін зерттеу үшін топырақ-климаттық жағдайлары бірдей, бірақ өсімдіктерде ^3H радионуклидінің әртүрлі шоғырлануы бар 8 зерттеу алаңы айқындалды. Шаған өз. ССП-ның шығыс шекарасы бойымен ағып өтеді. 1-суретте Шаған өз. бойынан өсімдік сынамаларын алу орындары (1-ден 8-ге дейінгі нүктелер) көрсетілген.

Зерттеу объектісі ретінде – ақ ши (*Achnatherum splendens*) өсімдігі таңдалды. Әрбір алаңда өсуіне қарай ақ ши (*Achnatherum splendens*) іріктеліп алынды. Экспедиция барысында сынама алынған жерлерде радиациялық параметрлерді өлшеу жүргізілді. γ -сәулесін шығарудың эквиваленттік дозасының қуаты (ЭДҚ) табиғи радиациялық фон деңгейінде –



1-сурет. Шаған өзенінің жағасында шидің (*Achnatherum splendens*) сынамаларын алу нүктелерінің орналасу сұлбасы

0,07–0,25 мкЗв/сағ, β – бөлшектер ағынының тығыздығы <10 жиіл/(мин·см 2) аспайды.

1.2. Өсімдіктердің бос суындағы ^3H радионуклидін анықтау

^3H радионуклидінің шоғырлануын анықтау үшін өсімдіктердің жер үсті бөліктері таңдалды. Өсімдіктердің жер үсті бөлігіндегі бос судан ^3H радионуклиді анықталды. Өсімдіктегі бос су арнайы қондырғыны қолдана отырып конденсациялау арқылы алынды [6]. Қондырғы салқындататын бетпен және өсімдіктерден буланған ылғалды жинауға арналған контейнермен жабдықталған өсімдік үлгілері салынатын жабық контейнер болып табылады.

Дайындалған үлгілерде ^3H радионуклидінің үлестік белсенділігін өлшеу TRI-Carb 2900 TR ЖС-спектрометрінде сұйықсцинтилляциялық спекторметрия әдісімен жүргізілді. [7].

1.3. Дозаны есептеу

Ішкі дозаны есептеу формуласы келесі түрде берілген:

$$D = \frac{q \cdot f \cdot E \cdot 1,6 \cdot 10^{-13}}{m}, \text{ бұл жердегі } (1)$$

D – тіндердегі альфа, бета-сәулеленудің сіңірілген дозасы; q – мүшедегі белсенділік; f – сәуле шығарудың кванттық шығысы (бета-сәулелену үшін ^3H кванттық шығуы 100% құрайды); E – сәулелену энергиясы, бета-сәулелену үшін орташа ($^3\text{H} - 5 \text{ кэВ}$); m – мүшенің массасы [8].

Сіңірілген доза тек өсімдіктердің вегетациялық кезеңін және өсімдік үлгілерінен алынған бос суды ескере отырып есептеледі.

1.4. Ақ шиді (*Achnatherum splendens*) цитогенетикалық зерттеу

Цитогенетикалық зерттеу үшін ақ ши (*Achnatherum splendens*) тұқымдары таңдалды. Зертханалық зерттеу барысында өніп шығатын өсімдік тұқымдарының меристема тамырларының бірінші митозындағы хромосомаларға цитогенетикалық талдау жүргізу әдістемесі басшылыққа алынды [9].

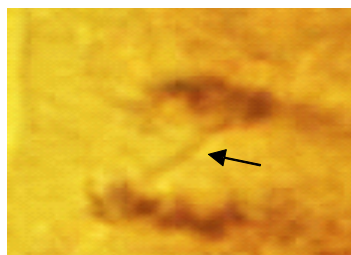
Цитогенетикалық зерттеулер барысында шөпте-сін өсімдіктердің негізгі түрлерінің өніп келе жатқан тұқымдарының тамырларының апикальды меристемасындағы хромосомалық абберрация жиілігіне талдау жүргізілді. Талдау кезінде көпірлер, фрагменттер және митоздық ауытқулар сияқты патологиялар ескерілді. Цитогенетикалық талдау AXIOSKOP 20 микроскопын пайдаланып, объективті $\times 10$, $\times 40$, $\times 100$ (май иммерсиясы) ұлғайта отырып жүргізілді.

1-кесте. Өсімдіктердегі ^3H радионуклидінің мөлшері және сіңірілген дозақуаты

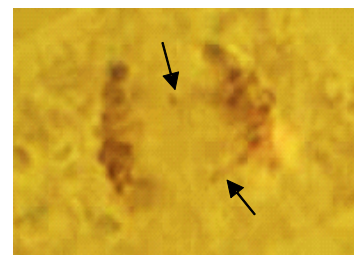
Сынама алу нүктелерінің №	Далалық радиометрия			^3H үлестік белсенділігі (кБк/кг)	Сіңірілген дозаның қуаты (мГр/с)
	гамма $h=0 \text{ см}$	гамма $h=1 \text{ м}$	бета		
	мкЗв/сағ		жиіл/(мин·см ²)		
1	0,07	0,07	<10	35±3,0	2,2·10 ⁻¹⁴
2	0,14	0,11	<10	35±3,0	2,2·10 ⁻¹⁴
3	0,10	0,09	<10	95±9,0	6,0·10 ⁻¹⁴
4	0,08	0,09	<10	45±4,0	2,8·10 ⁻¹⁴
5	0,15	0,15	<10	1,5±0,1	9,4·10 ⁻¹⁶
6	0,18	0,21	<10	1,5±0,1	9,4·10 ⁻¹⁶
7	0,25	0,16	<10	1,5±0,1	9,4·10 ⁻¹⁶
8	0,20	0,16	<10	3,0±0,3	1,9·10 ⁻¹⁵



а)



б)



в)

Ескерту: (ұлғ. 100х10) а) қалыпты хромосома; б) жалғыз көпір түріндегі абберрация; в) қос көпір түріндегі абберрация

2-сурет. Ақ шидің (*Achnatherum splendens*) митозының патологиясы

2. НӘТИЖЕЛЕР ЖӘНЕ ОЛАРДЫ ТАЛҚЫЛАУ

Өсімдіктердің бос суындағы ^3H радионуклидінің мөлшері және өсімдіктерге дозалық жүктемені бағалау

Өсімдіктер өсіп тұрған жерлеріндегі далалық радиометрияның нәтижелері және өсімдіктердің бос суындағы ^3H радионуклидінің үлестік белсенділігі мен сіңірілген дозаның қуаты 1-кестеде көрсетілген.

Радионуклидтік талдауларға сәйкес өсімдіктерде ^3H радионуклиді барлық нүктелерде тіркелген. Ақ шидегі (*Achnatherum splendens*) ^3H радионуклидінің мөлшері 1,5 кБк/кг-нан 95 кБк/кг-ға дейін болып табылады.

Далалық радиометрия деректері фондық мәндер деңгейінде ($\beta - <10 \text{ жиіл}/(\text{мин} \cdot \text{см}^2)$, $\gamma_0 - 0,07 - 0,25 \text{ мкЗв}/\text{сағ}$) орын алған. Таңдап алынған учаскелерде өсетін шидің (*Achnatherum splendens*) вегетативті мүшелерінде сіңірілген дозасының қуаты сәйкесінше $9,4 \cdot 10^{-16}$ -дан $6,0 \cdot 10^{-14} \text{ мГр}/\text{с}$ аралығында құбылады.

Ақ ши (*Achnatherum splendens*) өскіндеріндегі тұқымның меристемалық тамыршаларындағы цитогенетикалық әсерлер

Аберрациялар туні. Тамыр меристемасының барлық жасушаларының ішінде хромосомалық абберрациялардың жиілігі мен спектрін бағалау үшін қалыпты ағып жатқан ана-телофазалары бар жасушалар және осы кезеңдердің қалыпты ағымының әртүрлі бұзылулары бар жасушалар қарастырылды. 2-суретте шидегі (*Achnatherum splendens*) митоздың ауытқулары көрсетілген.

**ССП АУМАҒЫНДА ӨСЕТІН АҚ ШИДІҢ (*ACHNATHERUM SPLENDENS*)
ЦИТОГЕНЕТИКАЛЫҚ ПАРАМЕТРЛЕРІ**

*2-кесте. Ши (*Achnatherum splendens*) өскіндеріндегі цитогенетикалық бұзылулардың жиілігі мен спектрі*

³ H УБ, кБк/кг	қаралды және зерттелді				аберрациялар мөлшері					аберрантты жасушалардың жиілігі %
	тамырлар саны	ана-телофаза жасушаларының саны	аберрантты жасушалар	аберрациялардың жалпы саны	көпірлер		фрагменттер		g	
					m'	m''	f ^I	f ^{II}		
3,0±0,3	38	338	3	3	1	1	0	0	1	0,9±0,5
1,5±0,1	41	364	2	2	2	0	0	0	0	0,5±0,3
1,5±0,1	26	279	2	2	1	0	1	0	0	0,7±0,5
1,5±0,1	19	186	2	2	1	0	0	0	1	1,0±0,7
35±3,0	23	142	3	3	2	0	1	0	0	2,0±1,2
35±3,0	37	270	5	6	3	1	0	1	1	1,9±0,8
45±4,0	49	286	4	4	1	1	2	0	0	1,4±0,7
95±9,0	45	300	6	6	3	0	3	0	0	2,0±0,8

Ескерту: f' және f'' – жалғыз және қос фрагменттер; m' және m'' – жалғыз және қос көпірлер; m'+f' – хроматидті көпірлер мен фрагменттер; m''+f'' – хромосомалық көпірлер мен фрагменттер; g – хромосомалардың артта қалуы

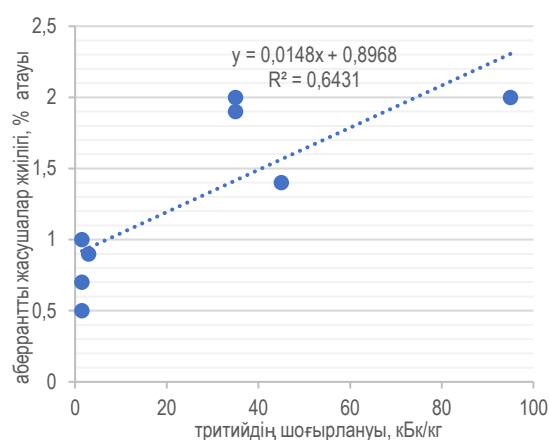
Аберрантты жасуша жиілігінің өзгеруі. Ши (*Achnatherum splendens*) тұқымындағы митоздағы аберрантты жасушалардың жиілігін және өсімдіктердің бос суындағы ³H радионуклидінің үлестік белсенділігін зерттеу нәтижелері 2-кестеде көрсетілген.

Ұсынылған 2-кестеде шидің (*Achnatherum splendens*) хромосомалық бұзылуларының ең көп мөлшері ³H радионуклидінің 35–95 (кБк/кг) бастап жинақталуы кезінде байқалатыны көрсетілген, мұнда хромосомалық бұзылулардың жиілігі 2,0%-ға дейін жетеді, аз ластанған нүктелердегі аберрантты жасушалардың жиілігі 0,5±0,3% диапазонында болды, бұл көптеген жабайы және дәмді дақылдар үшін аберрантты жасушалардың стихиялық жиілігінің әдеттегі диапазонына жақын (0,5–1,0%) [10].

Аберрация спектрінде жалғыз және қос көпірлер, фрагменттер және хромосомалардың артта қалуы анықталды. Жиыны шидің (*Achnatherum splendens*) тұқымынан 278 тамыр зерттелді, зерттелген ана-телофаза жасушаларының саны 2165 болды. Зерттелген барлық эксперименттік учаскелерде жалғыз көпірлер басым. Ақ шидегі фрагменттер ³H радионуклидінің мөлшері 1,5, 35, 35, 45, 95 кБк/кг болған кезде пайда болды. ³H радионуклидінің мөлшері 3, 1,5 және 35 кБк/кг болған кезде таңдап алынған өсімдіктердегі бөліну ұршығында хромосомалардың артта қалуы байқалды. Осы өсімдіктегі қос фрагмент шидегі (*Achnatherum splendens*) ³H радионуклидінің мөлшері 35 кБк/кг болған кезде анықталды.

**Аберрантты жасушаның шығу жиілігінің
сіңірілген дозаға тәуелділігі**

Сіңірілген доза қуатының максималды мәндері бар нүктелер шидегі (*Achnatherum splendens*) ³H радионуклидінің үлестік белсенділігінің максималды нүктелерімен сәйкес келеді, сондықтан тәуелділік өсімдіктердегі ³H радионуклидінің үлестік белсенділігіне негізделген. 3-суретте цитогенетикалық бұзылулар жиілігінің шидегі (*Achnatherum splendens*) ³H радионуклидінің шоғырлануына желілік тәуелділігі көрсетілген. Алынған деректерді талдау шидегі (*Achnatherum splendens*) бос суда ³H радионуклидінің мөлшері 1,5-тен 95 кБк/кг-ға дейін өзгертетінін көр-



3-сурет. Аберрантты жасуша бөліктерінің шығуының шидегі (*Achnatherum splendens*) тритий шоғырлануына тәуелділігі

сетті, сонымен қатар аберрантты жасушалардың жиілігі 0,9%-дан 2,0%-ға дейін өседі.

Шидегі (*Achnatherum splendens*) құрылымдық мутациялардың басым түрі химиялық ластаушы заттектердің әсер ету мүмкіндігін көрсететін хроматидті абберрациялар болды. Аз үлесті – хромосомалық абберрациялар радиациялық әсер ету маркерлері құрады [11]. Хромосомалардың құрылымдық зақымдануының бұл көрінісі радиациялық та және химиялық та ластаушы заттектердің әсерімен байланысты болуы мүмкін.

ҚОРЫТЫНДЫ

Ши (*Achnatherum splendens*) өсімдіктерінің бос суындағы ³H радионуклидінің максималды мөлшері 95 кБк/кг құрайды. ³H радионуклидінің анықталған мөлшері шегінде зерттелген өсімдік түріндегі хромосомалық бұзылулардың шығуының ³H радионуклидінің үлестік белсенділік деңгейіне желілік тәуелділігі анықталды.

Бұл зерттеулер Қазақстан Республикасының Энергетика министрлігінің «Қазақстан Республикасында атом энергетикасын дамыту» ғылыми-техникалық бағдарламасы (IRN – BR24792713) негізінде қаржыландырылды.

ПАЙДАЛАНЫЛҒАН ӘДЕБИЕТТЕР

1. Акчурин И.А. Семей ядролық полигоны. Құрылуы, қалыптасуы, қызметі / И.А. Акчурин. – М.: Голден-Би, 2007. – 225 б.
2. КСРО ядролық сынақтары: полигондардың қазіргі радиоэкологиялық жағдайы / В.А. Логачев ред-ған. – М.: АТ. бас., 2002. – 639 б.
3. Э.Г. Батырбеков. Семей сынақ полигонын кешенді радиоэкологиялық зерттеу / Э.Г. Батырбеков, А.О. Айдарханов, В.А. Витюк [және басқ.]. – ҚР ҰЯО РМК, 2021. – 340 б.
4. Айдарханов А.О. Бұрынғы Семей сынақ полигонындағы Шаған өзенінің жайылмасының радиоактивті ластану сипаттамасы: биол.ғыл.канд. автореф. дис.: 03.01.01 / Айдарханов Асан Оралханович. – Обнинск, 2013.
5. Айдарханов А.О., Лукашенко С.Н., Субботин С.Б., Эдомин В.И., Генова С.В және басқ., Шаған өз. экожүйесінің жай-күйі және оны қалыптастырудың негізгі механизмі // Қазақстанның радиоэкологиясының өзекті мәселелері [Радиациялық қауіпсіздік және экология институтының 2007-2009 жылдардағы еңбектер жинағы] / А.О. Айдарханов, С.Н. Лукашенко, С.Б. Субботин [және басқ.]. – Павлодар: Баспа үйі, 2010. – 2-шығ. – Б. 9–55.
6. Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В., Зарембо В.П. Қазақстан Республикасының инновациялық патенті. № 29721. Үлгілерден су алу қондырғысы //Электронды бюллетень. Астана, 2015. – бюллетень № 4. [Электрондық ресурс] URL: <http://kzpatents.com/4-ip29721-ustrojstvo-dlya-izvlecheniya-vody-iz-obrazcov.html>.
7. Тритий. Судың сапасы – берілген шоғырлануға сәйкес келетін тритий белсенділігін анықтау – сцинтилляциялық есептеудің сұйық әдісі. Қазақстан Республикасында есептік тіркеу 2000.03.07 № 116/149: Халықаралық стандарт ISO 9698/1989.
8. Моисеев А.А. Дозиметрия және радиациялық гигиена бойынша нұсқаулық / А.А. Моисеев, В.И. Иванов. – М: Энергоатомиздат, 1984. – 292 б.
9. Паушева З.В. Өсімдік цитологиясы бойынша семинар / З.В. Паушева. – М.: Колос, 1980. – 225 б.
10. Geras'kin S., Evseeva T., Oudalova A. Plants as a tool for the environmental health assessment. Encyclopedia of Environmental Health. Second edition. – Elsevier, 2019. – Vol. 5. – P. 239–248.
11. Streffer, C. Low dose exposures in the environment. Dose-effect relations and risk evaluation/ C. Streffer, H. Bolt, D. Follesdal [et al.]. – Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2004. – 471 p. – ISBN 978-3-662-08422-9.

REFERENCES

1. Akchurin I.A. Semey yadrolyk poligony. Quryluu, kalyp-tasuy, kyzmeti / I.A. Akchurin. – M.: Golden-Bi, 2007. – 225 b.
2. KSRO yadrolyk synaktary: poligondardyn kazirgi radioekologiyalyk zhardayy / V.A. Logachev red-ghan. – Moscow: AT. bas., 2002. – 639 p.
3. E.G. Bатыrbekov. Semey synaq poligonyn keshendi radioekologiyalyk zertteu / E.G. Bатыrbekov, A.O. Aydarkhanov, V.A. Vityuk [zhane basq.]. – QR YYaO RMK, 2021. – 340 p.
4. Aydarkhanov A.O. Bұrynғы Semey synaq poligonyn-dary Shağan өзенінің zhayылmasynың radioaktivті lastanu sipattamasy: biol.ryl.kand. avtoref. dis.: 03.01.01 / Aydarkhanov Asan Oralkhanovich. – Obninsk, 2013.
5. Aydarkhanov A.O., Lukashenko S.N., Subbotin S.B., Edomin V.I., Genova S.V zhane basq., Shağan өз. ekozhyyesiniң zhay-kyyi zhane ony qalyptastyrudyn negizgi mekhanizmi // Qazaqstannың radioekologiyasynың özehti мәseleleri [Radiatsiyalyk қаuiпsizdik zhane ekologiya institutynың 2007-2009 zhyldardaғы еңбектер zhinary] / A.O. Aydarkhanov, S.N. Lukashenko, S.B. Subbotin [zhane basq.]. – Pavlodar: Baspa üyi, 2010. – 2-shyf. – P. 9–55.
6. Lukashenko S.N., Larionova N.V., Zarembo V.P. Qazaqstan Respublikasynың innovatsiyalyk patenti. No. 29721. Ylgilerden su alu kondyryғыs // Elektrondy byulleten'. Astana, 2015. – byulleten' No. 4. [Elektrondyк resurs] URL: <http://kzpatents.com/4-ip29721-ustrojstvo-dlya-izvlecheniya-vody-iz-obrazcov.html>.
7. Tritiy. Sudyn sapasy – berilgen shoryrlanufa sәykes keletin tritiy belsendiligin anyқтаu – stsintillyatsiyalyk esep-teudin sұyyқ әdisi. Qazaqstan Respublikasynda esep-tik tirkeu 2000.03.07 No. 116/149: Khalykaralyk standart ISO 9698/1989.
8. Moiseev A.A. Dozimetriya zhane radiatsiyalyk gigiena boyynsha nұskaulyk / A.A. Moiseev, V.I. Ivanov. – Moscow: Energoatomizdat, 1984. – 292 p.
9. Pausheva Z.V. Ösimdik tsitologiyasy boyynsha seminar / Z.V. Pausheva. – Moscow: Kolos, 1980. – 225 p.
10. Geras'kin S., Evseeva T., Oudalova A. Plants as a tool for the environmental health assessment. Encyclopedia of Environmental Health. Second edition. – Elsevier, 2019. – Vol. 5. – P. 239–248.
11. Streffer, C. Low dose exposures in the environment. Dose-effect relations and risk evaluation/ C. Streffer, H. Bolt, D. Follesdal [et al.]. – Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2004. – 471 p. – ISBN 978-3-662-08422-9.

ЦИТОГЕНЕТИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ ЧИЯ БЛЕСТЯЩЕГО (*ACHNATHERUM SPLENDENS*)
ПРОИЗРАСТАЮЩЕГО НА ТЕРРИТОРИИ СИП

К. С. Минкенова*, А. В. Паницкий, А. Н. Мамырбаева

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

* E-mail для контактов: minkanova@nnc.kz

Для изучения возможного влияния радионуклида ^3H на цитогенетические показатели растений были проведены исследования растений, произрастающих в зоне разгрузки грунтовых вод с большим содержанием радионуклида ^3H . Исследованы цитогенетические показатели чия (*Achnatherum splendens*). Оценено влияние радионуклида ^3H на цитогенетическую структуру растений. В процессе исследований выявлено влияние радионуклида ^3H на цитогенетические эффекты чия (*Achnatherum splendens*) при исследуемых концентрациях в данном эксперименте.

Ключевые слова: радионуклид ^3H , хромосомные aberrации, чий блестящий, р. Шаган.

CYTOGENETIC PARAMETERS OF THE CHEE GRASS (*ACHNATHERUM SPLENDENS*)
GROWING AT THE STS AREA

K. S. Minkanova*, A. V. Panitskiy, A. N. Mamirbayeva

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

* E-mail for contacts: minkanova@nnc.kz

To study the possible effect of ^3H on the cytogenetic parameters of plants, studies were conducted on plants growing in the ground water discharge zone with a high content of ^3H . Cytogenetic parameters of chee grass (*Achnatherum splendens*) have been studied. The effects of ^3H on the cytogenetic structure of plants were evaluated. In the course of research, the effect of ^3H on the cytogenetic effects of chee grass (*Achnatherum splendens*) at the studied concentrations in this experiment was revealed.

Keywords: radionuclide ^3H , chromosomal aberrations, chee grass, Shagan river.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-113-118>

УДК 623.454.862:543.429.22:616.314

APPLICATION OF THE OPTIMIZATION THE PARAMETERS OF MEASURING TOOTH ENAMEL EPR SPECTRA FOR EMERGENCY HUMAN DOSIMETRY

M. K. Skakov^{1,2}, A. O. Aidarkhanov³, L. B. Kenzhina³, D. B. Biyakhmetova^{3*}, A. N. Mamyrbayeva³

¹⁾ National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan, Kurchatov, Kazakhstan

²⁾ Sarsen Amanzholov East Kazakhstan University, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan

³⁾ Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

* E-mail for contacts: biyakhmetova95@mail.ru

It is known from the world literature that for EPR spectrometry for emergency dosimetry, where doses from 0.5 Gy and higher are used, the quality and reliability of calculating the experimental dose depends on the parameters of recording spectra (accumulation time, microwave power).

This article describes the results of the development and application of a method for optimizing the parameter of recording EPR spectra on human tooth enamel, such as microwave power, but in the range of emergency radiation doses (from 1 Gy to 5 Gy), under conditions of a local radiation incident based on a biodosimetric laboratory. The results showed that the obtained experimental microwave power value of 5 MW is the most effective parameter for improving the quality of EPR spectra of human tooth enamel for a range of emergency radiation doses, even taking into account different types of spectrometers on which measurements are carried out. Optimization of the parameter for recording EPR spectra, in particular microwave power, improves the quality of the obtained spectra for the range of emergency radiation doses, even taking into account different types of spectrometers on which measurements are carried out.

Keywords: EPR-dosimetry, tooth enamel, EPR microwave power, emergency human dosimetry, EPR spectra.

INTRODUCTION

Radiation accidents, both large-scale and local, can occur as a result of a combination of various factors, including careless in handling radioactive materials or difficulties associated with the operation of radioactive sources at industrial facilities of the nuclear industry [1–3]. In the event of a radiation accident, information about the radiation dose of an irradiated patient is necessary for medical treatment and triage of an irradiated patient [4]. EPR dosimetry using biological samples of an irradiated patient (teeth, nails and hair) and his personal items has been widely studied for several decades for dose assessment. Tooth enamel is a well-known sample for assessing the effects of radiation on a patient in a radiological accident.

In the past, the method of EPR dosimetry of tooth enamel was actively investigated and used for the retrospective assessment of emergency doses after large-scale incidents such as the accidents at the Chernobyl nuclear power plant, Fukushima and for assessment of consequences of SNTS activity (Kazakhstan).

Currently, it is known that the method of tooth enamel EPR dosimetry is relevant for emergency radiation dosimetry, due to the high sensitivity of samples to high doses. Recent studies include such issues as the development of techniques for preparing samples without removing a whole tooth, by using only a tooth enamel biopsy [5, 6]. Also the approaches for different spectrometers to obtain a "purified" radiation-induced signal (RIS) are being studied [7, 8]. Various approaches to optimizing the procedure for calculating and interpreting EPR spectra are also being investigated, such as estimating the

minimum detection limit of RIS depending on the mass of the sample [9].

Despite the fact that EPR dosimetry of tooth enamel is currently being more actively developed in world science, especially in the field of emergency radiation doses, over the past 10 years, the experience of using this method in Kazakhstan has been limited by monitoring and calculating chronic retrospective doses in residents of the vicinity of the SNTS territory [10–12]. Then, there is one known study on the assessment of chronic doses received by employees of Kazakhstan's uranium processing plant [13]. However, in all these works, the EPR technique is applied according to the standard protocol without significant modifications of the method.

It should be noted that the application of the EPR dosimetry method for human tooth enamel, currently in Kazakhstan, has no research experience in modifying a standardized technique or improving the quality of the procedure for calculating EPR spectra, with the exception of one work [14].

In 2018, a study was conducted to optimize the parameters of spectrum measurement for tooth enamel EPR spectroscopy in order to improve the accuracy of the method based on a domestic laboratory [14]. As a result, the authors developed an approach to optimize the parameters of EPR spectra registration by determining the most effective range of microwave power values and the accumulation time during registration of spectra.

The authors determined the minimum uncertainty limit for EPR spectra with different microwave power – 2 MW, and also analyzed the effectiveness of increasing the accumulation time.

However, in this study, the authors used a range of low radiation doses (up to 0.5 Gy). The optimization of the specifically described parameters in this work was due to the dependence of the accuracy of experimental dose calculation with special recording parameters.

Nevertheless, it is known that the quality and reliability of dose calculation in a range of high doses (from 0.5 Gy) also depends on particular EPR spectra registration parameters [15, 16]. But for each individual study, it is necessary to determine individual values, considering the range of experimental doses and particular spectrometer features.

The purpose of our study was to develop a modification of recording parameters for human tooth enamel EPR spectra samples, such as microwave power (microwave) under conditions of a local radiation incident based on the biodosimetry laboratory of Kazakhstan.

MATERIALS AND METHODS

Sampling was carried out from 3 adult donors of the same age range (35–40 years old), which are residents of Ust-Kamenogorsk. The selected age range was chosen due to the influence of the donor's age on the quality of the measured EPR signal, since it depends on the number of the tooth enamel paramagnetic centers. This number increases throughout an individual's life. Up to 30–35 years, human tooth enamel may accumulate an insufficient number of centers, while after 45 years there is an excess of them, which can significantly contribute to parasitic noises and background RIS signal. Based on this, a specific age range was selected in this study.

A total sum of 10 teeth removed for medical reasons at a dental clinic were included in the analysis. The donors did not live in radioactively contaminated areas and were not exposed to acute emergency or chronic radiation exposure. According to information obtained through a donor questionnaire, dental samples have not been subjected to X-ray irradiation in the jaw area in the last 6 months.

Due to the special complexity and complexity of the sample preparation procedure, it was decided to conduct a study on combined samples. In addition, this study does not search the effect of donor age on the quality of the EPR signal due to the homogeneity of the group.

The selected samples were divided into buccal and lingual parts. The position of each sample was also taken into account in order to avoid ultraviolet sunlight exposure, since they may provoke the appearance of additional parasitic signals in RIS.

The preparation of combined samples of powdered tooth enamel was carried out according to the standard method of chemical treatment of whole teeth samples. After chemical treatment, the enamel was crushed into particles of 0.5–1.5 mm in size. This granule size was chosen because it is the most optimal in terms of minimizing the effects of sample anisotropy and surface noise, which leads to distortion of the EPR signal. Mixed samples were divided into portions equated to 100 mg, and then irradiated. According to the results of the sample

preparation, 3 samples of 73.6, 77 and 75.4 mg were obtained, respectively.

The irradiation was carried out at a gamma-ray installation with a source of Cs^{137} . The samples were also irradiated at 3 dose points: 1.3 and 5 Gy, and measurements at the 0 Gy point were also included. This range of dose points was determined due to the special effectiveness of the investigated method in measuring high emergency doses. Since this is a pilot study on the modification of measurement parameters, it was decided to choose a small range of dose points in order to avoid strong uncertainties when measuring EPR spectra. In further studies, it is planned to use a wider range of experimental radiation doses. Dose control was carried out with preliminary measurement of the enamel spectra before irradiation, then equated to the sample spectrum of manganese.

All measurements were performed in the X frequency range on a Bruker ESP 300 E EPR spectrometer at a stabilized room temperature of 21 °C. The spectrometer is equipped with a spherical TE ES-UCX2 resonator with a high Q factor. Table 1 shows the parameters for measuring the spectra.

Table 1. Parameters for measuring EPR spectra on tooth enamel samples

Name, unit	Value
The amplitude of the signal intensity, MT	3622
Field width, MT	3480
Scan width, MT	93.1
Modulation frequency, kHz	100
Receiver of the time constant, ms	20.48
Scan time, ms	40.96
Frame scan, Mt	10
Microwave power, MW	9.70
Number of scans	50
Spectrum set time, min	5–20

The signal of the control sample containing Mn^{2+} installed in the cavity was recorded together with each sample spectra. The signal in the tube spectrum was received with a minimum value, and no subtraction was carried out.

RESULTS AND DISCUSSION

For computer processing of EPR spectra, an automated program was used as part of the spectrometer software. This procedure is capable of scanning the experimental spectrum of irradiated enamel using the nonlinear least squares method using a model spectrum describing an analytical form of RIS and BGS (background signal). The spectrum processing procedure was applied in the BGS description mode with two components consisting of a combination of derivatives of Gaussian functions.

The window was set with a left boundary of -1.0 MT and a right boundary of $+2.0$ MT relative to the BGS maximum. During the fitting process, the following parameters were changed: RIS amplitude, amplitudes of narrow and wide BGS components, width of the narrow

BGS component, vertical and horizontal shifts of the spectra. The baseline correction was performed by fitting a first-order polynomial to two regions of the spectrum between the tooth enamel signal and two Mn^{2+} signals.

At the same time, RIS amplitude was determined for a series of spectra by irradiated samples at different doses and measured with the same registration parameters.

Then, according to the dependence of the RIS amplitude on the nominal dose, the parameters of the calibration dependence were determined by linear regression and, using these parameters, the dose in the enamel was determined based on RIS amplitude.

To optimize the parameter for recording spectra, EPR signals from the spectra of 3 samples weighing up to 100 mg were recorded at 10, 20, 40 scans (which corresponds to an accumulation time of 5, 10, 20 minutes, respectively) and at microwave power of 1, 5 and 15 MW.

Figure 1 shows that RIS amplitude, depending on the increase in the experimental dose, has a linear structure for all 3 samples at a microwave power value of 5 MW. This is due to an increase in both low-frequency and high-frequency noise components in the spectra at other parameter values.

There is a comparative uniformity of the signal increase with an increase in microwave power at dose points 1 and 3 Gy (Fig. 1a; 1b) however, at the dose point of 5 Gy, a deviation in the curve was recorded at a power value of 5 MW. The presence of such fluctuations is probably due to the influence of the heterogeneity of the RIS in the experimental doses values, since at this dose point EPR signals for all samples show a sufficient range of values. We suppose that it can be caused by increased noise component at a high radiation dose, as well as specific spectrometer characteristics.

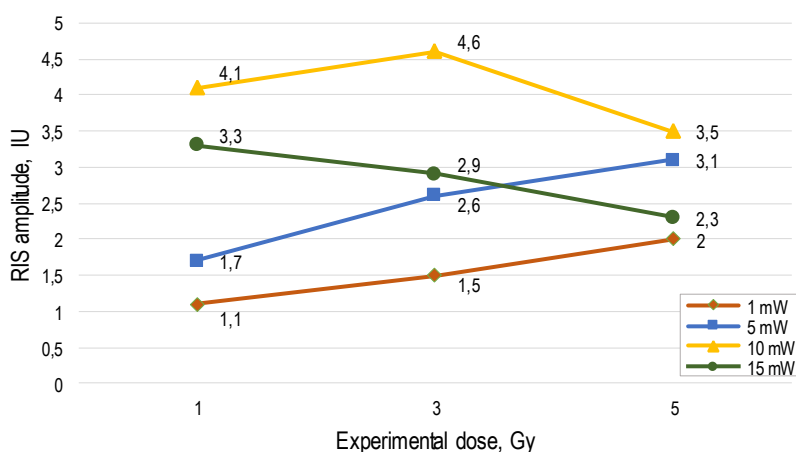


Figure 1. Sample 1 – Dependence of the RIS amplitude on range of the microwave power with 3 dose points

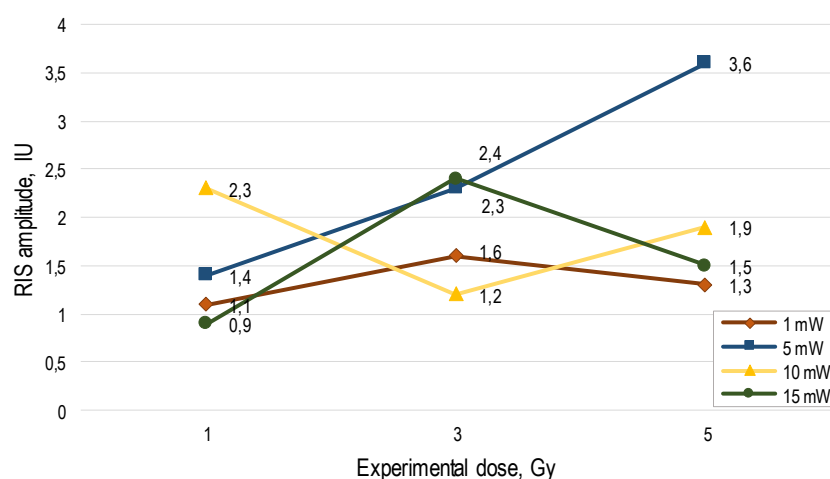


Figure 2. Sample 2 – Dependence of the RIS amplitude on range of the microwave power with 3 dose points

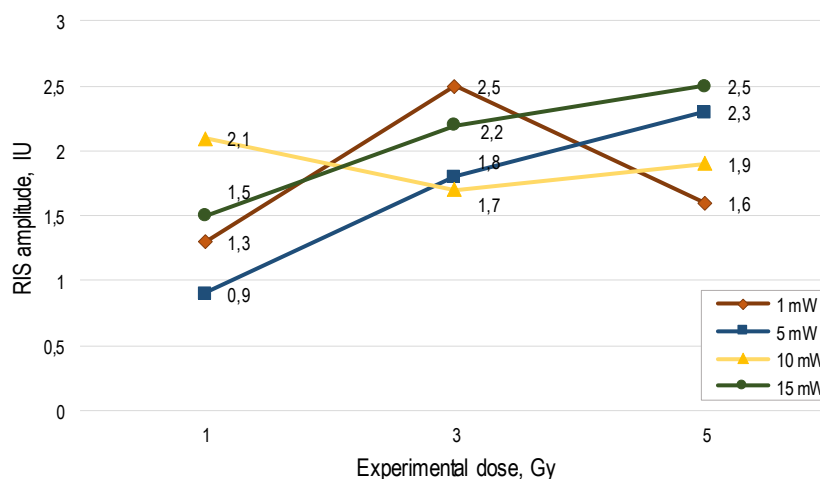


Figure 3. Sample 3 – Dependence of the RIS amplitude on range of the microwave power with 3 dose points

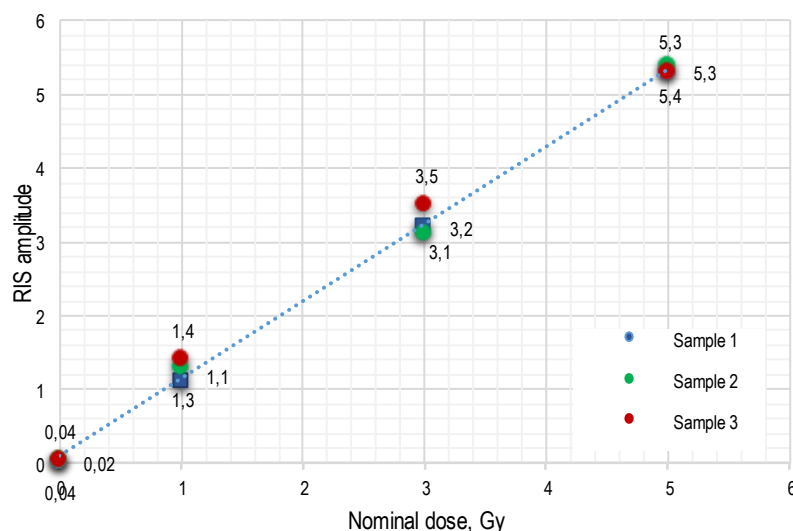


Figure 4. The obtained experimental values of all samples at 3 dose points

In comparison with the previous work [15], there is a difference in a certain effective value of microwave power for the most reliable calculation of the absorbed experimental dose. It has been established that the most effective value of microwave power for recording EPR spectra in the range of emergency doses is 5 MW.

The slope curve of the experimental dose values from the nominal ones was also calculated. The experimental absorbed dose accumulated in the samples was calculated using a standard formula.

As a parameter characterizing the accuracy of dose determination, for each series of spectra measured with the same registration parameters, the standard deviation of the dose between certain and nominal values (SDD) was calculated.

As it can be seen from Table 2, the values of experimental doses vary slightly from the nominal values. However, standard deviation for each sample correspond to the literature data and generally accepted meanings for tooth enamel samples. Next Figure 4 demonstrates the

spread of experimental dose values relative to the nominal curve.

Table 2. Calculated values of the received doses

Nominal dose, Gy	Sample, №	Experimental dose, Gy	SDD, %
0	1	0.02	10
	2	0.04	
	3	0.04	
1	1	1.1	13
	2	1.3	
	3	1.4	
3	1	3.2	16,6
	2	3.1	
	3	3.5	
5	1	5.3	19
	2	5.4	
	3	5.3	

Figure 4 shows the increasing of the RIS peaks. With regard to the curve of the energy dependence of the intensity values of tooth enamel RIS in relation to experimental dose, we can conclude, that this parameter has a fairly linear shape (Figure 4). However, there are discrepancies in the dose range from 0.4 to 5.8 Gy (the values of the actual absorbed doses). These differences can be explained by the presence of background noise signals that somehow occur with each repeated measurement, as well as possible technical features of the spectrometer used. This is also due to the fact that even on the same tooth, the degree of formation of stable radicals depends on the chemical structure of each enamel sample.

A study of the EPR spectroscopy approach for human tooth enamel was conducted, taking into account the optimization of the parameter for recording EPR spectra (microwave power) at 3 dose points under conditions of a local radiation incident.

It was found that at a microwave power value of 5 MW, a linear increase in the EPR signal is observed, similar to the amplitude of the RIS with increasing dose.

It is shown that the obtained results correlate with the literature data on the use of this modification in the field of low doses of radiation. The values of the standard deviation were expected and do not conflict with the standardized methodology.

It was found that the increased differences in the intensity values of RIS at the dose point of 5 Gy, depending on the increase in microwave power, can be explained by the influence of a noise signal, as well as the uncertainty of the signal at the highest radiation dose.

CONCLUSION

In this study, we applied an optimization technique for the parameter of recording EPR spectra on human tooth enamel, in the range of emergency radiation doses (from 1 Gy to 5 Gy), under conditions of a local radiation incident. The results showed that optimization of the parameter for recording EPR spectra, in particular microwave power, improves the quality of the obtained spectra for a range of emergency radiation doses, even taking into account different types of spectrometers on which measurements are carried out.

The further direction for research should be the improvement of approaches for dose calculation EPR methods in the range from 1 to 3 Gy, as well as the study of other methods for optimizing processing parameters and calculating EPR spectra for emergency doses.

The application and study of individual EPR spectrometry and physical dosimetry techniques for the identification and evaluation of the absorbed dose specifically in the range from 1 Gy represents an extensive promising area for applied research, due to high individual sensitivity and reliable results, which are the primary factors of high-quality individual dosimetry.

This research was funded by the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan within the framework of the scientific and technical program "Nuclear power engineering development in the Republic of Kazakhstan" (IRN – BR24792713).

REFERENCES

1. International Atomic Energy Agency (IAEA), Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and Their Remediation: Twenty Years of Experience, IAEA Radiological Assessment Reports Series, 2006.
2. International Atomic Energy Agency (IAEA), The Fukushima Daiichi Accident, 2015.
3. International Atomic Energy Agency (IAEA), The Radiological Accident in Chilca, 2018.
4. TMT HANDBOOK, Triage, Monitoring and Treatment of People Exposed to Ionizing Radiation Following a Malevolent Act, 2009.
5. Romanyukha A. et al. Q-band electron paramagnetic resonance dosimetry in tooth: biopsy procedure and determination of dose detection limit // Radiat. Environ. Biophys. – 2014. Vol. 53. – P. 305–310.
6. Williams B.B., et al. In vivo EPR tooth dosimetry for triage after a radiation event involving large populations, // Radiat. Environ. Biophys. – 2014. – Vol. 53. – P. 335–346.
7. Nakai Y., et al. Effects of ultraviolet rays on L-band in vivo EPR dosimetry using tooth enamel // Appl. Magn. Reson. – 2022. – Vol. 53. P. 305–318.
8. Beinke C., et al. Contribution of biological and EPR dosimetry to the medical management support of acute radiation health effects // Appl. Magn. Reson. – 2022. – Vol. 53. – P. 265–287.
9. Fattibene P., et al. The 4th international comparison on EPR dosimetry with tooth enamel: Part 1: Report on the results // Radiation Measurements. – 2011. – Vol. 46, Issue 9. – P.765-771.
10. Zhumadilov, K. EPR dosimetry study for population residing in the vicinity of fallout trace for nuclear test on 7 August 1962 // Radiation Protection Dosimetry. – 2016. – Vol. 172. – P. 260–264.
11. Жумадилов К.Ш., Иванников А.И., Степаненко В.Ф., Хоши М. Оценка степени воздействия испытаний на полигоне Лобнор (Китай) на население Республики Казахстан методом эпр дозиметрии // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – № 1(78). – С. 53–57. [Zhumadilov K. Sh., Ivannikov A. I., Stepanenko V. F., Hoshi M. Evaluation of the Impact of tests at the Lobnor test site (China) on the population of the Republic of Kazakhstan using the EPR dosimetry method // NNC RK Bulletin. – 2018. – Issue 1(73). – P. 53–57. (In Russ.)]
12. Жумадилов К.Ш., Иванников А.И., Сарсенова С.М., Степаненко В.Ф., Хоши М. Результаты ЭПР дозиметрии по зубной эмали населения, проживающего вблизи Семипалатинского ядерного полигона // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – № 1(73). – С. 49–52. [Zhumadilov K.Sh., Ivannikov A.I., Sarsenova S.M., Stepanenko V.F., Hoshi M. The Results of EPR Dosimetry on Tooth Enamel of the Population Living Near the Semipalatinsk Nuclear Test Site// NNC RK Bulletin. – 2018. – Issue 1(73). – P. 49–52. (In Russ.)]
13. Оразалина И.С., Абышев Б.К., Иванников А.И., Жумадилов К.Ш. Сравнительный анализ фоновых доз, полученных ЭПР методом по зубной эмали жителей городов Степногорск и Семипалатинск // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – № 1(73). – С. 49–52. [Orazalina I.S., Aбышев B.K., Ivannikov A.I., Zhumadilov K.Sh. Comparative analysis of background doses obtained by EPR method by tooth enamel of residents of Stepnogorsk

- and Semipalatinsk // NNC RK Bulletin. – 2018. – Issue 1(73). – P. 49–52. (In Russ.)
14. Жумадилов К. Ш., Иванников А. И., Степаненко В. Ф., Хоши М. Оптимизация параметров измерений ЭПР дозиметрических спектров образцов зубной эмали // Вестник Карагандинского университета. Серия: Физика. – 2018. – № 3(91). – С. 29–36. [Zhumadilov K.Sh., Ivannikov A.I., Stepanenko V.F., Hoshi M. Optimization of dental enamel EPR dosimetry spectra measurements parameters // Bulletin of the Karaganda University. Physics Series. – 2018. – Issue 3. – P. 29–36 (In Rus.)]
15. Park J.I., et al. Dependence of radiation-induced signals on geometry of tooth enamel using a 1.15 GHz electron paramagnetic resonance spectrometer: improvement of dosimetric accuracy // Health Phys. – 2021. – Vol. 120. – P. 152–162.
16. Yamaguchi I., et al. L-band electron paramagnetic resonance tooth dosimetry applied to affected cattle teeth in Fukushima // Appl. Sci. – 2021. – Vol. 11. – P. 1187–1193.

АДАМНЫҢ АПАТТЫҚ ДОЗИМЕТРИЯСЫ ҮШІН ЭПР-СПЕКТРЛЕРДІ ӨЛШЕУ ПАРАМЕТРЛЕРІН ОҢТАЙЛАНДЫРУ ӘДІСІН ҚОЛДАНУ

Скаков М. К.^{1,2}, Айдарханов А. О.³, Кенжина Л. Б.³, Бияхметова Д. Б.^{3*}, Мамырбаева А. Н.³

¹⁾ «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК, Курчатов, Қазақстан

²⁾ Сарсен Аманжолов атындағы Шығыс Қазақстан университеті, Өскемен, Қазақстан

³⁾ ҚР ҰАО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: biyakhmetova95@mail.ru

Өлемдік әдеби деректерден 0,5 Гр және одан жоғары дозалар пайдаланылатын апаттық дозиметрия мақсатында ЭПР әдісін пайдаланған кезде эксперименттік дозаны есептеудің сапасы мен дұрыстығы спектрлерді тіркеу параметрлеріне (жинақтау уақыты, микротолқынды қалыңдығы) байланысты екені белгілі.

Бұл мақалада жергілікті радиациялық оқиға жағдайында адамның тіс эмальында ЭПР спектрлерін тіркеу параметрін оңтайландыру әдісін әзірлеу және қолдану нәтижелері сипатталған. Зерттеу 1 Гр-ден 5 Гр-ге дейін доза диапазонында сәулеленген адамның тіс эмальының үлгілерінде жүргізілді. Нәтижелер 5 МВт микротолқынды қалыңдығында апаттық сәулелену дозалары диапазоны үшін адамның тіс эмальының ЭПР спектрлерінің сапасын жақсартудың ең тиімді параметрі екенін көрсетті. ЭПР спектрлерін тіркеу параметрін оңтайландыру, атап айтқанда микротолқынды қалыңдығы, өлшеу жүргізілетін спектрометрлердің әртүрлі түрлерін ескере отырып, апаттық сәулелену дозалары диапазоны үшін алынған спектрлердің сапасын арттырады.

Түйін сөздер: ЭПР-дозиметрия, тіс эмальы, микротолқынды қуат, физикалық дозиметрия, ЭПР-спектр.

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА ОПТИМИЗАЦИИ ПАРАМЕТРОВ ИЗМЕРЕНИЯ ЭПР-СПЕКТРОВ ДЛЯ АВАРИЙНОЙ ДОЗИМЕТРИИ ЧЕЛОВЕКА

Скаков М. К.^{1,2}, Айдарханов А. О.³, Кенжина Л. Б.³, Бияхметова Д. Б.^{3*}, Мамырбаева А. Н.³

¹⁾ РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Курчатов, Казахстан

²⁾ Восточно-Казахстанский университет имени Сарсена Аманжолова, Усть-Каменогорск, Казахстан

³⁾ Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

* E-mail для контактов: biyakhmetova95@mail.ru

Из мировых литературных данных известно, что при использовании метода ЭПР в целях аварийной дозиметрии, где используются дозы от 0,5 Гр и выше качество и достоверность расчета экспериментальной дозы зависит от параметров регистрации спектров (время накопления, микроволновая мощность).

В данной статье описываются результаты разработки и применения метода оптимизации параметра регистрации спектров ЭПР на зубной эмали человека, такого как микроволновая мощность, но в диапазоне аварийных доз облучения (от 1 Гр до 5 Гр), в условиях локального радиационного инцидента на базе биодозиметрической лаборатории. Результаты показали, что полученное экспериментальное значение мощности СВЧ 5 МВт является наиболее эффективным параметром для повышения качества ЭПР-спектров зубной эмали человека для диапазона аварийных доз облучения, даже с учетом разных типов спектрометров, на которых проводятся измерения. Оптимизация параметра регистрации спектров ЭПР, в частности мощность СВЧ, повышает качество полученных спектров для диапазона аварийных доз облучения, даже с учетом разных типов спектрометров, на которых проводятся измерения.

Ключевые слова: ЭПР-дозиметрия, зубная эмаль, микроволновая мощность, физическая дозиметрия, ЭПР-спектр.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-119-127>

УДК 539.213.26

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СТАБИЛИЗИРУЮЩИХ ДОБАВОК ДЛЯ НАПРАВЛЕННОЙ МОДИФИКАЦИИ И УПРОЧНЕНИЯ $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ КЕРАМИК

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, М. Б. Кабиев¹, И. Е. Кенжина^{2,3}, А. У. Толенова³

¹⁾ Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

²⁾ РГП «Институт ядерной физики» МЭ РК, Алматы, Казахстан

³⁾ Satbayev University, Алматы, Казахстан

* E-mail для контактов: kozlovskiy.a@inp.kz

В данной работе представлены результаты экспериментальных работ, связанных с получением $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизированных Y_2O_3 , выбор которых обусловлен большими перспективами использования их в качестве материалов для инертных матриц дисперсного ядерного топлива. В ходе проведенных экспериментов, направленных на определение эффективности влияния стабилизирующих добавок в виде Y_2O_3 на изменение структурных, прочностных параметров $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик было установлено, что увеличение концентрации стабилизирующих добавок выше 0,1 М приводит к формированию в структуре включений в виде зерен $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, формирование которых связано с эффектами полиморфных трансформаций в диоксиде циркония при высокотемпературном отжиге. Определено, что замещение катионов циркония катионами иттрия приводит к увеличению концентрации кислородных вакансий в составе керамик, изменение концентрации которых также связано с фазовыми трансформациями в структуре, возникающими при больших концентрациях стабилизирующего допанта. При этом оптимальными концентрациями стабилизирующих добавок является концентрация 0,15 М, при которой соотношение структурных, прочностных параметров имеет оптимальные значения, определяющие потенциальное использование их в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива, обладающих высокими прочностными характеристиками.

Ключевые слова: $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики, стабилизирующие допанты, упрочнение, твердость, дисперсное ядерное топливо, фазовые трансформации.

ВВЕДЕНИЕ

В последние годы интерес к керамическим материалам на основе цирконатов или стабилизированных циркониевых керамик обусловлен возможностью использования их в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива [1, 2]. В данном случае инертные матрицы выступают в роли сдерживающих изоляционных материалов для ядерного топлива от внешней среды, а также поглощая продукты деления ядерного топлива в виде осколков деления, а также ионизирующего излучения, которое сопровождает процессы выгорания ядерного топлива [3, 4]. Интерес к использованию керамических материалов в качестве основы инертных матриц, в частности, для создания гомогенного дисперсного ядерного топлива, в котором делящийся материал в виде мелкодисперсных частиц равномерно распределен в инертной матрице, обусловлен совокупностью прочностных, теплофизических характеристик, а также высокими показателями инертности к воздействию агрессивных сред и высоких температур, что в свою очередь позволяет использовать данные материалы в режимах экстремальной эксплуатации (при высоких температурах и больших нагрузках радиационного воздействия), что в свою очередь позволяет достичь высоких значений глубины выгорания ядерного топлива [5, 6]. Как правило, в концепции развития дисперсного ядерного топлива лежат возможности увеличения температуры активной зоны, позволяющей

увеличить глубину выгорания ядерного топлива, величина которой обусловлена устойчивостью материалов, используемых для удержания продуктов распада ядерного топлива, а также использование оружейного плутония в качестве делящегося ядерного материала, использование которого позволит снизить имеющиеся запасы в мире, а также уменьшить количество радиоактивных отходов, возникающих в результате выгорания ядерного топлива [7, 8].

Высокие показатели устойчивости к различным агрессивным средам, а также химическим реакциям, возникающим в результате взаимодействия инертных матриц с теплоносителем, а также устойчивость к химическим взаимодействиям материала инертной матрицы на основе цирконатов с ядерным топливом являются одними из ключевых факторов, определяющих перспективность использования данных типов керамик в качестве основы для новых видов дисперсного ядерного топлива [9, 10]. При этом несмотря на достаточно низкие показатели теплопроводности цирконатов, возможность их эксплуатации при высоких температурах, а также устойчивость к термическому расширению позволяет снизить риски, связанные с возникновением локального перегрева ядерного топлива, способных привести к его расплавлению. Также возможность структурных изменений цирконатов за счет использования стабилизирующих допантов позволяет увеличить их устойчивость к внешним воздействиям, а также увеличить радиационную

стойкость, что в свою очередь позволяет повысить сроки эксплуатации, и как следствие, глубину выгорания ядерного топлива [11–13].

Использование стабилизирующих добавок, как правило, используется с целью изменения прочностных или теплофизических параметров керамик, результатом которых являются высокопрочные керамики с тем же самым фазовым составом, содержащим небольшие включения в виде примерных фаз, или фазовых включений, связанных с процессами замещения или внедрения. Как известно, при добавлении стабилизирующих элементов в состав керамики формирование твердых растворов происходит за счет замещения катионов Zr^{4+} трехвалентными катионами стабилизаторов, в результате которого происходит образование кислородной вакансии, возникновение которой обеспечивает поддержание электронейтральности решетки. Также использование стабилизирующих допантов может оказать эффект структурных превращений, связанных с трансформацией структуры пироклора в структуру флюорита, результатом которой является изменение теплофизических и прочностных параметров, обусловленных изменениями концентрации кислородных вакансий в объеме керамик [14, 15].

На основании вышесказанного основной целью данного исследования является определения оптимальных концентраций стабилизирующих допантов в виде Y_2O_3 используемых для модификации $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик, полученных методом механохимического твердофазного синтеза, а также подвергнутых термическому спеканию, используемому для синтеза и инициализации процессов фазообразования. При этом выбор стабилизирующего допанта в качестве компоненты для модификации обусловлен возможностями повышения устойчивости керамик за счет формирования примесных включений в виде новых фаз, появление которых обусловлено эффектами структурных изменений, вызванных замещением катионов в окто- и тетраэдрических позициях. Выбор в качестве объектов исследования $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизированных допантом Y_2O_3 обусловлен совокупностью их прочностных и теплофизических параметров, позволяющих использовать их в качестве конструкционных материалов, а также оценке возможности получения новых данных о фазовых трансформациях данного типа керамик в результате воздействия ионизирующего излучения, а также высоких температур, что позволит в дальнейшем использовать полученные данные для определения потенциала использования данных керамик в ядерной энергетике и реакторостроении.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В качестве компонент для получения керамик использовались монодисперсные порошки Nd_2O_3 , ZrO_2 , Y_2O_3 , средний размер зерен которых составлял порядка 3–5 мкм, химическая чистота которых составляла порядка 99,95%, а сами порошки были приобре-

тены у компании Sigma Aldrich (США). Выбор оксидных порошков в качестве исходных компонент для синтеза обусловлен возможностями исключения процессов расплавления перемолотой шихты при использовании карбонатов, которые в результате термического отжига ускоряют процесс плавления при более низких температурах, что в свою очередь приводит к дестабилизации процесса синтеза. В качестве основного метода синтеза был выбран метод механохимического твердофазного перемалывания исходных смесей с заданным соотношением компонент (стехиометрическим соотношением) с последующим термическим отжигом перемолотых порошков в муфельной печи при температуре 1200 °С. Выбор температуры отжига основан на априорных экспериментальных данных, полученных в результате экспериментов по синтезу $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в широком температурном диапазоне, вариация которого позволяла установить, что в диапазоне температур 1100–1250 °С происходит формирование высокопрочной фазы $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ с кубическим типом кристаллической решетки со структурой пироклора, обладающей высокой степенью структурного упорядочения.

Механохимический синтез осуществлялся в планетарной мельнице PULVERISETTE 6 (Fritsch, Берлин, Германия). Скорость помола составляла 400 об/мин, время смешивания 30 минут. Выбор условий механохимического перемалывания образцов керамик обусловлен возможностями исключения эффектов холодного сваривания образцов при длительном ударном механическом воздействии мелющих тел на образцы, возникающего при высоких скоростях помола и длительного времени воздействия. После перемалывания исследуемые порошки подвергались термическому отжигу в муфельной печи Nabertherm LE 4/11/R6 (Nabertherm, Лилиенталь, Германия). Температура отжига составляла 1200 °С, скорость нагрева печи до выхода на заданную температуру в камере составляла 20 °С/мин, по достижению заданной температуры образцы выдерживались в камере в течение 5 часов, после чего нагрев останавливался, и образцы остывали вместе с печью в течение 24 часов до достижения в печи комнатной температуры.

Морфологические особенности перемалываемых порошков, подвергнутых термическому отжигу изучались с применением метода растровой электронной микроскопии, реализованной на PhenomTM ProX (Thermo Fisher Scientific, Эйндховен, Нидерланды). Съемка образцов проводилась в режиме сканирования при ускоряющем напряжении 15 кВ и рабочем отрезке порядка 7,3–7,4 мм. Снимки были получены при увеличении порядка 25–30 крат.

Оценка фазового состава и структурных параметров была осуществлена с применением метода рентгеноструктурного анализа, выполненного на порошковом дифрактометре D8 ADVANCE ECO (Bruker, Карлсруэ, Германия). Съемка дифрактограмм осуще-

ствлялась в геометрии Брегг – Брентано, в угловом диапазоне $2\theta = 20\text{--}100^\circ$, шаг съемки составлял $0,03^\circ$, время набора в точке составляло 1 сек. Рентгеновское излучение генерировалось медной трубкой с длиной волны $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$. Обработка рентгеновских дифрактограмм проводилась с использованием программного кода DiffEVA v.4.2. Уточнение параметров осуществлялось путем сравнительного анализа положения дифракционных пиков с эталонными значениями из базы данных PDF-2. Определение весовых вкладов каждой установленной фазы осуществлялось путем определения интенсивностей и площадей рефлексов для каждой установленной фазы с учетом коррундовых чисел, что в совокупности позволило с достаточно высокой точностью (не менее 0,1 вес.%) установить весовой вклад каждой фазы, что позволило сопоставить изменения фазового состава керамик при вариации условий синтеза, в частности, изменений температуры отжига или вариации концентрации стабилизирующих добавок.

Для подтверждения структурных изменений в $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамике в зависимости от концентрации допанта Y_2O_3 использовался метод рамановской спектроскопии, реализованный с использованием рамановского спектрометра Enspectr M532 (Spectr-M LLC, Черноголовка, Россия).

Оптические свойства $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик были изучены с применением методов УФ-спектроскопии, реализованном с применением УФ-спектрофотометра SPECORD 200/210/250 PLUS (Analytik Jena, Йена, Германия). Спектры были получены с использованием интегральной сферы. Диапазон измерений составлял от 190 до 1000 нм, шаг измерений составлял 1 нм, время набора спектра в точке 1 сек. Результатом измерений являлись спектры пропускания и спектры поглощения, общий анализ которых позволил установить взаимосвязи между фазовыми изменениями и оптическими свойствами керамик.

Изучение механических свойств исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в зависимости от изменений концентрации стабилизирующей добавки в составе было проведено с использованием метода определения твердости, а также устойчивости к однократному сжатию.

Определение твердости осуществлялось по методу Виккерса, где в качестве индентера использовалась алмазная пирамидка, а измерения проводились путем индентирования данной пирамидке при заданной нагрузке в поверхность образца керамик, выдержке в течение определенного времени при заданной нагрузке и последующей оценке формы отпечатка индентера, а также определению его диагоналей для вычисления значений твердости. Для измерений был использован микротвердомер LM 700 (LECO, Святой Иосиф, США). Измерения проводились при нагрузке на индентер в 100 Н, время выдержки индентера под нагрузкой составило порядка 30 сек.

Определение синтезированных керамик на устойчивость к растрескиванию было проведено с использованием метода однократного сжатия образцов керамик и определения величины максимального давления, при котором происходит растрескивание образцов и их разрушение. Регистрация изменений устойчивости керамик к однократному сжатию проводилась с применением экстензометра, а также изменений показателя величины нагрузки при однократном сжатии. Испытания проводились с использованием одноколонной электромеханической испытательной машины LFM-L 10kN (Walter + Bai AG, Лёнинген, Швейцария).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Одним из наиболее эффективных способов повышения устойчивости керамик к внешним воздействиям наряду с использованием методов дислокационного упрочнения, связанного с уменьшением размеров зерен, является метод использования стабилизирующих добавок, добавление которых позволяет не только изменить прочностные характеристики керамик, но и в случае циркониевых керамик снизить температуры их спекания [16, 17]. Так, использование таких добавок как оксиды иттрия (Y_2O_3) магния (MgO), кальция (CaO) или скандия (Sc_2O_3), позволяют снизить температуру отжига, необходимую для стабилизации кристаллической структуры, а также их уплотнения за счет инициализации процессов полиморфных трансформаций, что позволяет снизить затраты на производство данных керамик, а также уменьшить нагрузку на оборудование, используемое для термической обработки порошков. При этом в основе выбора стабилизирующих добавок лежит принцип стабилизации полиморфных превращений в циркониевых керамике, с возможностью получения стабильных фаз, устойчивых к внешним воздействиям. Немаловажную роль стабилизирующие добавки играют и изменении плотности керамик, а также их морфологические особенности, позволяя получать более однородные по составу зерна, а также контролировать процессы спекания при более низких температурах [18–21].

На рисунке 1 приведены результаты рентгеновской дифракции исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в зависимости от концентрации добавленных в их состав стабилизирующей добавки Y_2O_3 , изменение концентрации которой варьировалось в диапазоне от 0,01 М до 0,20 М.

Общий вид представленных дифрактограмм в зависимости от изменений концентрации стабилизирующих добавок свидетельствует о том, что при увеличении концентраций выше 0,05 М в составе керамик формируются примесные включения, наличие которых обусловлено эффектами фазообразования, связанных с формированием примесных фаз или полиморфных превращений.

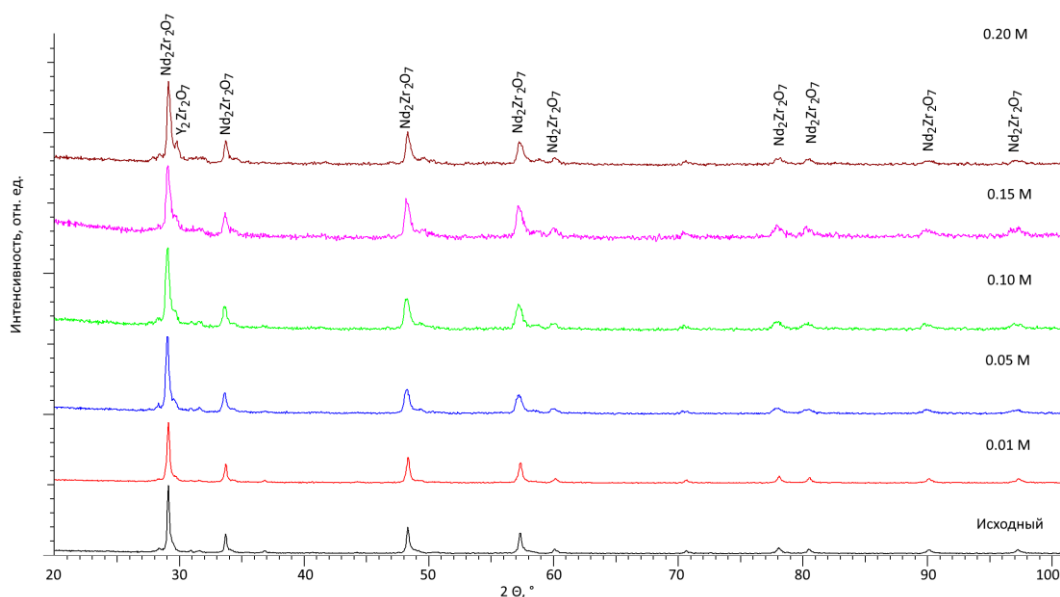


Рисунок 1. Результаты рентгеновской дифракции исследуемых керамик в зависимости от концентрации Y_2O_3 в составе керамик

Таблица 1. Данные структурных параметров в зависимости от концентрации допанта Y_2O_3

Фаза	Параметр кристаллической решетки и ее объем					
	Концентрация допанта Y_2O_3 , М					
	0	0,01	0,05	0,10	0,15	0,20
$\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$	$a=10,6152 \text{ \AA}$, $V=1196,13 \text{ \AA}^3$	$a=10,6236 \text{ \AA}$, $V=1199,00 \text{ \AA}^3$	$a=10,6491 \text{ \AA}$, $V=1207,64 \text{ \AA}^3$	$a=10,6604 \text{ \AA}$, $V=1211,49 \text{ \AA}^3$	$a=10,6674 \text{ \AA}$, $V=1213,87 \text{ \AA}^3$	$a=10,6726 \text{ \AA}$, $V=1215,66 \text{ \AA}^3$
$\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$	–	–	–	$a=5,2162 \text{ \AA}$, $V=141,92 \text{ \AA}^3$	$a=5,2049 \text{ \AA}$, $V=141,00 \text{ \AA}^3$	$a=5,2004 \text{ \AA}$, $V=140,64 \text{ \AA}^3$

Анализ полученных рентгеновских дифрактограмм синтезированных керамик стабилизированных Y_2O_3 показал, отсутствие каких – либо дифракционных рефлексов, связанных с формированием включений в виде зерен Y_2O_3 , однако в случае концентраций допанта 0,1 М в составе керамик наблюдается формирование кубической фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, наличие которой в данном случае обусловлено процессами полиморфных трансформаций моноклинной фазы ZrO_2 , при термической обработке которой происходит формирование кубической фазы, весомой вклад которой увеличивается при увеличении концентрации стабилизирующего допанта, о чем свидетельствует изменение интенсивности рефлексов, характерных для данной фазы. При этом результаты структурных параметров, представленные в таблице 1, свидетельствуют о процессах катионного замещения, что приводит к увеличению параметров фазы $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, а в случае формирования кубической фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, уменьшение параметров которой свидетельствует о структурной упорядочении данной фазы в результате термического отжига.

На рисунке 2 приведены результаты сравнительного анализа рамановской спектроскопии исследуе-

мых образцов $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в зависимости от вариации концентрации стабилизирующей добавки в составе керамик. Анализ рамановских спектров $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизированных Y_2O_3 свидетельствует о более выраженных структурных изменениях, в области малых концентрациях, наличие которых может быть объяснено структурными эффектами связанными с формированием керамик, а также процессами фазовых трансформаций, которые не могут быть зарегистрированы с помощью рентгеновской дифракции в виду малых концентраций. Так при малых концентрациях Y_2O_3 равных 0,01–0,05 М, на рамановских спектрах присутствуют спектральные моды, характерные для $E_g \text{ Nd}_2\text{O}_3$, однако его интенсивность достаточно мала, что свидетельствует о малом весовом вкладе данных включений, которые могут быть в рентгеноаморфном состоянии (т.е. не регистрироваться с помощью метода рентгеновской дифракции в виду малых размеров). При повышении концентрации до $x = 0,1$ М на спектрах образца исчезает пик при 433 см^{-1} , соответствующий Nd_2O_3 , при этом возникает пик при 534 см^{-1} , который может быть отнесен к моде $B_g \text{ c-ZrO}_2$, или согласно данным рентгеновской дифракции формированию фазы за-

мещения по типу $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, наличие которой также свидетельствует о полиморфных трансформациях вызванных наличием стабилизирующей добавки в составе.

На рисунке 3 приведены результаты оценки оптических свойств исследуемых керамик в зависимости от концентрации стабилизирующего допанта, общий вид которых свидетельствует о сохранении основных оптических свойств $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик, которые характеризуются наличием полос поглощения, характерных для редкоземельных элементов, обуславливающих формирование поглощающих центров.

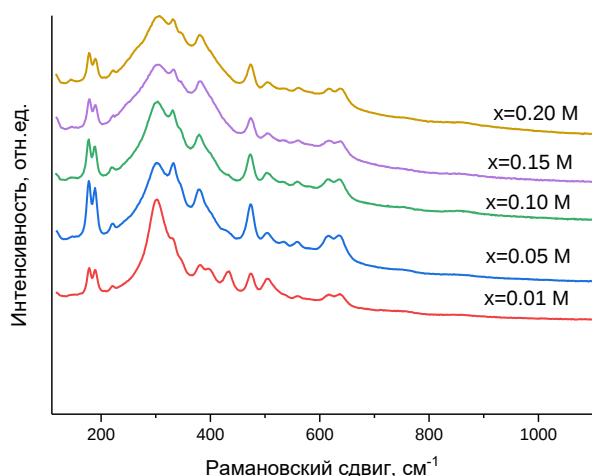


Рисунок 2. Результаты рамановской спектроскопии исследуемых керамик в зависимости от вариации концентрации стабилизирующей добавки

Наличие спектральных линий на спектрах поглощения в диапазоне длин волн 200–300 нм свидетельствует о наличие в структуре $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик кислородных вакансий, наличие которых обусловлено процессами замещения катионов Zr^{4+} трехвалентными катионами Y^{3+} в результате чего происходит формирование дополнительных кислородных вакансий для поддержания сохранения электронейтральности в решетке. Таким образом, увеличение концентрации стабилизирующего допанта в составе керамик приводит к изменению концентрации кислородных вакансий, при этом наблюдаемое сохранение спектральных линий поглощения, характерных для редкоземельных элементов, свидетельствует о стабильности поглощающих центров для всех концентраций стабилизирующих допантов. При этом сравнивая наблюдаемые изменения интенсивностей полос кислородных вакансий, можно сделать вывод о том, что в случае добавления в состав $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизирующего допанта Y_2O_3 , добавление которого при концентрациях выше 0,1 М приводит к формированию включений в виде кубической фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, возникновение которой обусловлено эффектами полиморфных трансформаций, интенсивность спектральных полос для кислородных вакансий свидетельствует об их увеличении.

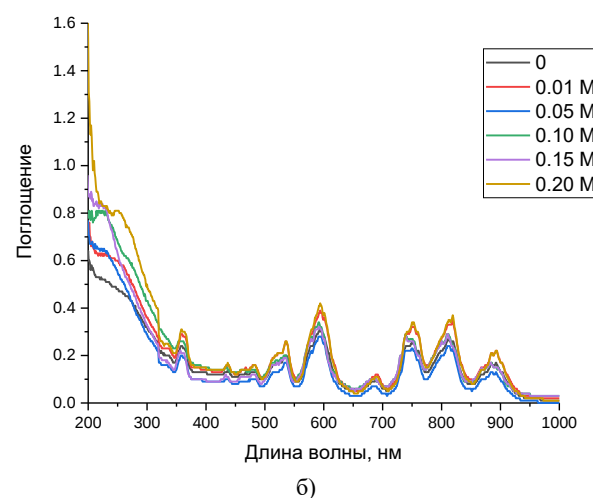
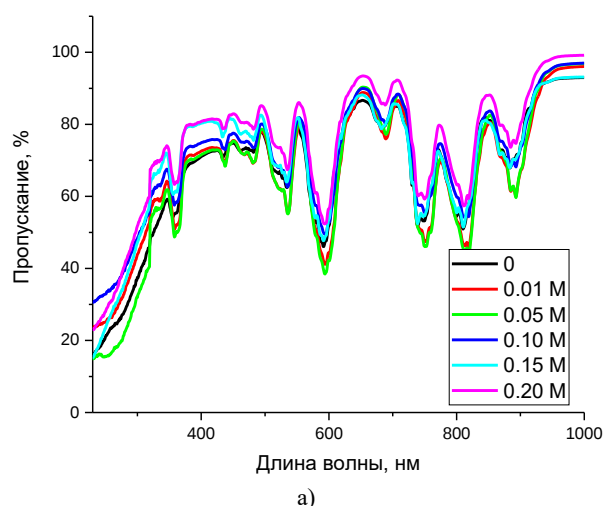


Рисунок 3. Спектры пропускания (а) и поглощения (б) $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в зависимости от концентрации стабилизирующей добавки Y_2O_3

На рисунке 4 приведены результаты исследования морфологических особенностей $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик при добавлении в них стабилизирующей добавки Y_2O_3 , отражающие изменение размеров и формы зерен, связанных с процессами структурного упорядочения и фазообразования.

Согласно полученным данным, добавление в состав $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизирующей добавки Y_2O_3 , при увеличении концентрации которой в составе керамик наблюдается формирование фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ наблюдается формирование более крупной фракции, в виде ромбовидных зерен, окруженных мелкой фракцией, представляющей собой частицы $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$. Подобные структурные изменения связаны с процессами агломерации и последующей трансформации зерен в результате полиморфных превращений, результатом которых является формирование кубической фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$. При этом наблюдаемое увеличение количества крупных зерен в составе керамик имеет хорошее согласие с результатами изменений фазового состава керамик.

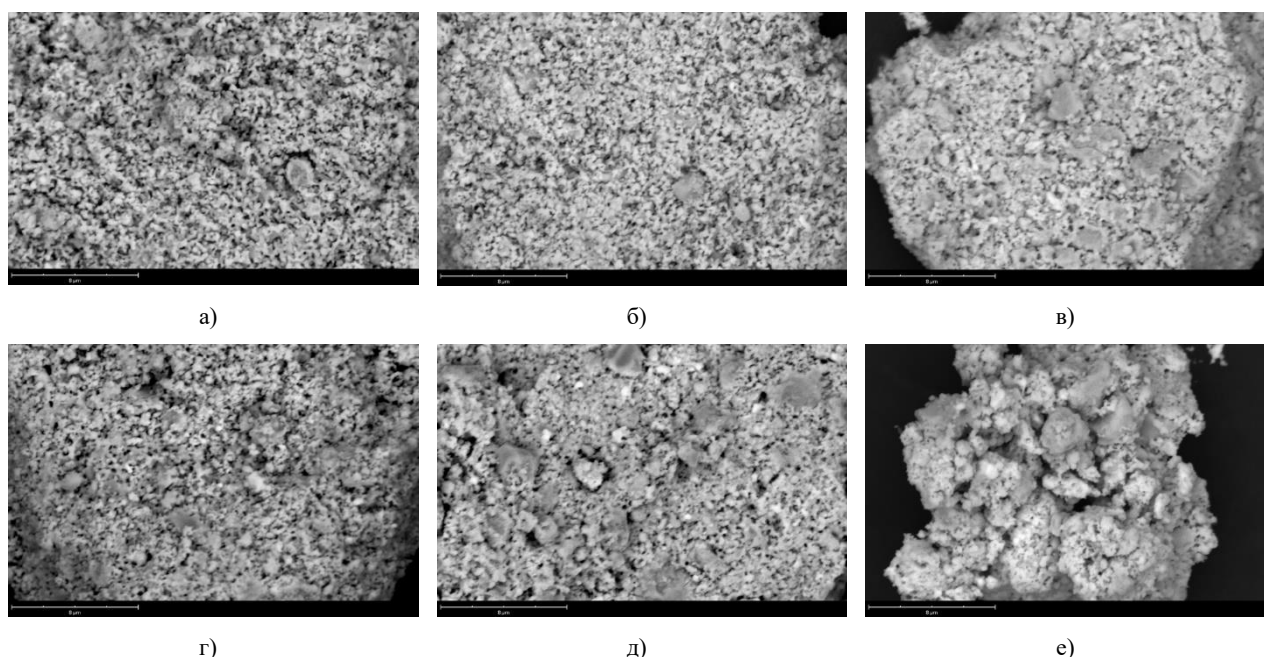


Рисунок 4. Результаты морфологических особенностей синтезированных $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик при добавлении в них стабилизирующей добавки Y_2O_3 с различной концентрацией: исходный (а); при добавлении 0,01 М (б), 0,05 М (в), 0,10 М (г), 0,15 М (д) и 0,20 М (е) Y_2O_3

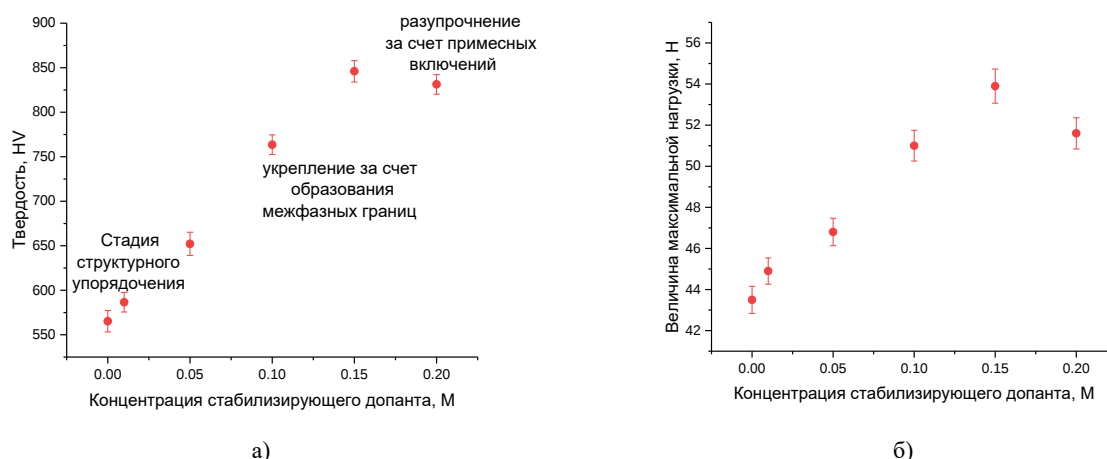


Рисунок 5. Результаты оценки изменения твердости исследуемых керамик в зависимости от концентрации стабилизирующих допантов в составе (а) и величины максимального давления, выдерживаемого керамикой при однократном сжатии (б)

Следует также отметить, что в случае $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик, стабилизированных Y_2O_3 , формирования мелких включений в отдельных зернах Y_2O_3 не установлено, как в случае керамик, стабилизированных MgO , для которых наблюдался эффект формирования буферной зоны в межзеренном пространстве из зерен MgO , что в свою очередь приводит к различным морфологическим эффектам, которые по-разному могут оказать влияние на эффекты упрочнения [22].

На рисунке 5 приведены результаты оценки влияния изменения концентрации стабилизирующих добавок на прочностные свойства $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик.

Данные представлены в виде зависимостей изменения значений твердости исследуемых керамик и величины максимального значения давления способного выдержать керамикой до растрескивания от концентрации стабилизирующего допанта в составе, изменение которого приводит к формированию в структуре примесных включений.

Общий вид наблюдаемых изменений прочностных характеристик можно разделить на три характерных участка, связанных с различными структурными изменениями в керамиках при вариации концентрации стабилизирующих допантов. При этом характер изменения значений твердости в зависимости кон-

центрации допанта имеет схожий тренд, из чего можно сделать вывод о том, что основные изменения связаны, как со структурным упорядочением, так и концентрационными зависимостями весовых вкладов примесных включений в составе керамики.

Первая стадия характеризуется малыми изменениями прочностных характеристик наблюдаемых при добавлении в состав керамики 0,01 М, упрочнение для которых составляет не более 2–3% в сравнении с данными твердости для нестабилизированных керамики. Столь малые изменения могут быть обусловлены эффектом структурного упорядочения, связанного с увеличением степени структурного упорядочения, обусловленного изменением структурных параметров при частичном замещении катионов циркония в структуре керамики. При формировании в структуре керамики включений в виде $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ наблюдается резкое увеличение твердости, при этом тренд увеличения твердости сохраняется в пределах концентраций допанта 0,05–0,015 М. Такое изменение прочностных характеристик, т.е. упрочнение за счет формирования включений, обусловлено уплотнением керамики. При увеличении концентрации с 0,15 до 0,20 М наблюдается ухудшение твердости, которое в свою очередь может быть обусловлено эффектами формирования примесных включений и увеличением фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, большая концентрация которой приводит к дестабилизации прочностных характеристик.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлены результаты исследований влияния добавления стабилизирующей добавки Y_2O_3 на изменение структурных, оптических и прочностных свойств $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики, полученных методом механохимического твердофазного синтеза.

Согласно проведенным исследованиям изучения структурных изменений в керамиках при вариации концентрации стабилизирующей добавки было установлено, что при концентрации выше 0,1 М в составе керамики наблюдается формирование примесной фазы $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ появление которой обусловлено эффектами полиморфных трансформаций, вызванных эффектами катионного замещения. При этом анализ оптических характеристик исследуемых керамики в данном случае показал, что формирование данной фазы приводит к увеличению концентрации кислородных вакансий, увеличение которых обусловлено замещением Zr^{4+} трехвалентными катионами Y^{3+} , в результате для выполнения сохранения электро-нейтральности кристаллической решетки происходит формирование кислородной вакансии.

Общий анализ полученных зависимостей изменений прочностных параметров исследуемых керамики в зависимости от концентрации стабилизирующих добавок позволяет сделать вывод о перспективности использования стабилизирующих добавок для увеличения прочности $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики, при концентрациях в пределах 0,1–0,15 М. При этом оптимальными концентрациями стабилизирующих добавок является

концентрация 0,15 М, при которой соотношение структурных, прочностных и теплофизических параметров имеет оптимальные значения, определяющие потенциальное использование их в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива, обладающих высокими прочностными характеристиками. Полученные зависимости упрочнения обусловлены эффектом формирования включений в виде $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ зерен, формирование которых приводит к упрочнению за счет изменения дислокационной плотности (малые размеры зерен обуславливают увеличение дислокационной плотности), а также образованным межфазным границам, приводящих к созданию дополнительных барьеров для механически – индуцированных трещин при внешних воздействиях.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Vijayan D. et al. Development, characterization, and properties of $\text{LnSmZr}_2\text{O}_7$ ($\text{Ln} = \text{Dy, Ho, Yb}$) defect fluorite functional ceramics // *Materials Chemistry and Physics*. – 2023. – Vol. 307. – P. 128085.
2. Xuechao T. I., Weimin L. I. Study on the phase evolution of Nd 3+-doped zirconolite ceramics ($\text{Ca}_{1-x}\text{Nd}_x\text{ZrTi}_2\text{O}_{7+x/2}$) // *Nonferrous Metals Science and Engineering*. – 2024. – Vol. 15, No. 2. – P. 302–310.
3. Tong Y. et al. A study of Eu-doped $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ nanocrystals prepared by salt-assistant combustion synthesis // *Journal of alloys and compounds*. – 2013. – Vol. 550. – P. 268–272.
4. Choudhary B. et al. Effect of sintering temperature on the transport properties of $\text{La}_2\text{Ce}_2\text{O}_7$ ceramic materials // *Ceramics International*. – 2022. – Vol. 48, No. 5. – P. 6758–6766.
5. Matzke H. Radiation damage in nuclear fuel materials: the “rim” effect in UO_2 and damage in inert matrices for transmutation of actinides // *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B*. – 1996. – Vol. 116, No. 1-4. – P. 121–125.
6. D'Agata E. et al. The behaviour under irradiation of molybdenum matrix for inert matrix fuel containing americium oxide (CerMet concept) // *Journal of Nuclear Materials*. – 2015. – Vol. 465. – P. 820–834.
7. Matzke H. Radiation effects in nuclear fuels // *Radiation Effects in Solids*. – Dordrecht: Springer Netherlands, 2007. – P. 401–420.
8. Ledergerber G. et al. Inert matrix fuel for the utilisation of plutonium // *Progress in Nuclear Energy*. – 2001. – Vol. 38, No. 3-4. – P. 301–308.
9. Singh Y. et al. Investigation of local structure and phase recovery in an irradiated Nd 2 Zr 2 O 7 pyrochlore // *Journal of Materials Chemistry C*. – 2024. – Vol. 12, No. 34. – P. 13525–13536.
10. Qing Q. et al. Irradiation response of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ under heavy ions irradiation // *Journal of the European Ceramic Society*. – 2018. – Vol. 38, No. 4. – P. 2068–2073.
11. Ferrigno J., Adnan S., Khafizov M. Influence of point defect accumulation on in-pile thermal conductivity degradation: Fuel rod defect distribution and deviation between in-pile and post irradiation thermal conductivity // *Journal of Nuclear Materials*. – 2023. – Vol. 573. – P. 154108.
12. Eriksen T. E., Shoesmith D. W., Jonsson M. Radiation induced dissolution of UO_2 based nuclear fuel—A critical

- review of predictive modelling approaches // Journal of Nuclear Materials. – 2012. – Vol. 420, No. 1–3. – P. 409–423.
13. Hurley D. H. et al. Thermal energy transport in oxide nuclear fuel // Chemical reviews. – 2021. – Vol. 122, No. 3. – P. 3711–3762.
14. Ghosh B. et al. Defect Engineering in Composition and Valence Band Center of $\text{Y}_2(\text{Y}_x\text{Ru}_{1-x})_2\text{O}_7-\delta$ Pyrochlore Electrocatalysts for Oxygen Evolution Reaction // Journal of the American Chemical Society. – 2024. – P. 1–10.
15. Sharma S. K. et al. Response of nonstoichiometric pyrochlore composition $\text{Nd}_{1-8x}\text{Zr}_2\text{O}_{7-1}$ to electronic excitations // Journal of the American Ceramic Society. – 2024. – Vol. 107, No. 1. – P. 561–575.
16. Fedorov P. P., Yarotskaya E. G. Zirconium dioxide. Review // Конденсированные среды и межфазные границы. – 2021. – Vol. 23. – No. 2 (eng). – P. 170–188.
17. Ghazanfari A. et al. Additive manufacturing and mechanical characterization of high density fully stabilized zirconia // Ceramics International. – 2017. – Vol. 43, No. 8. – P. 6082–6088.
18. Sktani Z. D. I. et al. Effects of additives additions and sintering techniques on the microstructure and mechanical properties of Zirconia Toughened Alumina (ZTA): A review // International Journal of Refractory Metals and Hard Materials. – 2022. – Vol. 106. – P. 105870.
19. Hevorkian E. et al. Effect of the sintering parameters on the structure and mechanical properties of zirconia-based ceramics // Ceramics International. – 2024. – Vol. 50, No. 19. – P. 35226–35235.
20. Jang K. J. et al. Effect of the volume fraction of zirconia suspensions on the microstructure and physical properties of products produced by additive manufacturing // Dental Materials. – 2019. – Vol. 35, No. 5. – P. e97–e106.
21. Yu T. et al. Extrusion-based additive manufacturing of yttria-partially-stabilized zirconia ceramics // Ceramics International. – 2020. – Vol. 46, No. 4. – P. 5020–5027.
22. A.L. Kozlovskiy, M. Kabiyeu Study of the effect of variations in the MgO dopant on changes in the structural, strength and thermophysical parameters of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics // ES Materials & Manufacturing (2024). – P.1–10.

$\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ КЕРАМИКАСЫН БАҒЫТТАЛҒАН МОДИФИКАЦИЯЛАУ ЖӘНЕ БЕРІКТЕНДІРУ ҮШІН ТҰРАҚТАНДЫРУШЫ ҚОСПАЛАРДЫ ҚОЛДАНУ

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, М. Б. Кабиев¹, И. Е. Кенжина^{2,3}, А. У. Толенова³

¹⁾ Л. Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан

²⁾ ҚР ЭМ «Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

³⁾ Satbayev University, Алматы, Казахстан

* E-mail для контактов: kozlovskiy.a@inp.kz

Бұл жұмыста Y_2O_3 тұрақтандырылған $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамика өндірісіне байланысты тәжірибелік жұмыстардың нәтижелері берілген, оларды таңдау дисперсті ядролық отынның инертті матрицалары үшін материалдар ретінде пайдаланудың үлкен болашағына байланысты. $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамикасының құрылымдық және беріктік параметрлерінің өзгеруіне Y_2O_3 түріндегі тұрақтандырғыш қоспалардың әсер ету тиімділігін анықтауға бағытталған тәжірибелер барысында тұрақтандырушы қоспалар концентрациясының 0,1 М-ден жоғары жоғарылауы, құрылымында $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ түйіршіктері түріндегі қосындылардың түзілуіне әкеледі, олардың түзілуі жоғары температурада күйдіру кезінде цирконий диоксидіндегі полиморфты түрлендірулердің әсерлерімен байланысты. Цирконий катиондарын итрий катиондарымен алмастыру керамика құрамындағы оттегі бос орындарының концентрациясының жоғарылауына әкелетіні анықталды, оның концентрациясының өзгеруі тұрақтандырғыш қоспаның жоғары концентрацияларында пайда болатын құрылымдағы фазалық өзгерістермен де байланысты. Бұл жағдайда тұрақтандырғыш қоспалардың оңтайлы концентрациясы 0,15 М концентрациясы болып табылады, бұл кезде құрылымдық және беріктік параметрлерінің арақатынасы олардың беріктік сипаттамалары жоғары дисперсті ядролық отынның инертті матрицалары үшін материалдар ретінде әлеуетті қолданылуын анықтайтын оңтайлы мәндерге ие болады.

Түйін сөздер: $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамика, тұрақтандырғыш қоспалар, беріктендіру, қаттылық, дисперсті ядролық отын, фазалық түрлендірулер.

USE OF STABILIZING ADDITIVES FOR TARGETED MODIFICATION AND HARDENING
OF $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ CERAMICS

A. L. Kozlovskiy^{1,2,3*}, M. B. Kabiye¹, I. E. Kenzhina^{2,3}, A. U. Tolenova³

¹⁾ *L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan*

²⁾ *RSE "Institute of Nuclear Physics" ME RK, Almaty, Kazakhstan*

³⁾ *Satbayev University, Almaty, Kazakhstan*

* E-mail for contacts: kozlovskiy.a@inp.kz

This paper presents the results of experimental work related to the preparation of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics stabilized by Y_2O_3 , the choice of which is due to the great prospects for their use as materials for inert matrices of dispersed nuclear fuel. During the conducted experiments aimed at determining the effectiveness of the influence of stabilizing additives in the form of Y_2O_3 on the change of structural and strength parameters of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics it was found that the increase in the concentration of stabilizing additives above 0.1 M leads to the formation of inclusions in the structure in the form of $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ grains, the formation of which is associated with the effects of polymorphic transformations in zirconium dioxide during high-temperature annealing. It was determined that the substitution of zirconium cations by yttrium cations leads to an increase in the concentration of oxygen vacancies in ceramics composition, the change in the concentration of which is also associated with phase transformations in the structure, arising at high concentrations of stabilizing dopant. At the same time, the optimum concentration of stabilizing additives is the concentration of 0.15 M, at which the ratio of structural and strength parameters has optimum values, determining their potential use as materials of inert matrices of dispersed nuclear fuel with high strength characteristics.

Keywords: $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics, stabilizing dopants, hardening, hardness, dispersed nuclear fuel, phase transformations.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-128-137>

УДК 556.3:539.16 (574.41)

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЕРТИКАЛЬНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ ВОДОТОКОВ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»

Р. Г. Ермакова*, А. К. Айдарханова, Ж. Е. Тлеуканова, А. С. Мамырбаева

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

* E-mail для контактов: lavrikova@nnc.kz

В статье представлены данные исследования вертикального распределения радионуклидов в донных отложениях водотоков бывшей испытательной площадки «Дегелен» Семипалатинского испытательного полигона. В рамках данных исследований проведен отбор проб донных отложений в виде ненарушенных колонок. На основании полученных данных содержания радионуклидов в образцах донных отложений построены гистограммы, описывающие распределение радионуклидов по вертикали. Рассмотрено распределение техногенных радионуклидов ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^3H . Содержание ^{241}Am находится ниже ПО во всех отобранных образцах. Содержание ^{137}Cs и ^{90}Sr составило от 3 ± 1 до 180 ± 20 Бк/кг и от 10 ± 1 до 13000 ± 2000 Бк/кг, соответственно. Содержание ^3H определялось в двух формах: в свободной воде (для образцов донных отложений с руч. Узынбулак) и в прочносвязанной форме. Содержание ^3H в свободной воде составило от 6400 ± 640 Бк/кг до 21000 ± 2100 Бк/кг, ^3H в прочносвязанной форме – от 8 ± 1 Бк/кг до 5300 ± 550 Бк/кг.

Ключевые слова: СИП, ручей, техногенные радионуклиды, радионуклидное загрязнение, вертикальное распределение, донные отложения.

ВВЕДЕНИЕ

Донные отложения играют важную роль в формировании гидрохимического режима воды и функционировании экосистем водных объектов, отражая совокупность физических и химических процессов и являются стабильным компонентом, где могут накапливаться загрязняющие вещества [1, 2].

Изучение вертикального распределения радионуклидов в почвах представляет интерес с нескольких точек зрения. Во-первых, от распределения радионуклидов по профилю зависит мощность дозы излучений в поверхностном слое (мощность дозы снижается по мере проникновения радионуклида в нижние слои). Во-вторых, вымывание радионуклидов поверхностными водами из почвы загрязненного участка зависит от концентрации радионуклидов в поверхностном слое, а она, в свою очередь, изменяется вследствие вертикального распределения. В-третьих, сведения о скорости вертикального распределения требуются для оценки возможности вторичного загрязнения вод радионуклидами [3].

Вторая половина XX века ознаменовалась поступлением в окружающую среду огромного количества техногенных радионуклидов. В это время были созданы основные радиохимические предприятия – ПО «Маяк» [4], Сибирский химический комбинат [5] и Красноярский горно-химический комбинат [6] – расположенные в водосборных бассейнах рек Оби и Енисея. В результате работы данных предприятий часть жидких радиоактивных отходов с различными уровнями активности попадала в гидрографические сети, что допускалось существовавшим в то время регламентом. Радиоактивное загрязнение в составе пресноводного стока из водосборных бассейнов Обской губы и Енисейского залива поступало в область

смешения с водами Карского моря. Исследования, проведенные в два этапа, охватывают значительный временной промежуток – с 1995 по 2001 гг. и с 2014 по 2019 гг. Это позволило не только зафиксировать текущее состояние радиационного фона, но и проследить динамику изменений, произошедших в донных отложениях за последние 20 лет. Различия в распределении ^{137}Cs в донных отложениях Обской и Енисейской зонах повышенных активностей (ЗПА), выявленные в ходе работ, оказались явными и достаточно контрастными. Согласно первому этапу (1995–2001 гг.), в Енисейской ЗПА максимальное значение удельной активности ^{137}Cs , составило 263 Бк/кг на глубине 5 см. Анализ вертикального распределения ^{137}Cs по данным второго этапа (2014–2019 гг.) показывает, что в поверхностных слоях удельная активность радионуклида не превышает 12 Бк/кг, максимум находится на глубине 12 см и равен 32 Бк/кг. На первом этапе исследований Обской ЗПА анализ вертикального распределения ^{137}Cs показал максимум 112 Бк/кг на глубине 19 см. На втором этапе исследований максимальная удельная активность ^{137}Cs составила 13,5 Бк/кг на глубине 9 см. Установлена полная деградация Обской зоны повышенной активности ^{137}Cs и весьма существенная – Енисейской, которая первоначально была наиболее загрязненной [7].

Изучение вертикального распределения радионуклидов в донных отложениях связано с серьезными экологическими последствиями радиационных и техногенных аварий. Интерес еще более возрос после аварии на АЭС «Фукусима-1» в 2011 г., следствием которой стало радиоактивное загрязнение речных бассейнов северо-восточного побережья о. Хонсю [8]. Так, в результате аварии на АЭС «Фукусима-1» произошло загрязнение ^{137}Cs бассейнов речных сис-

тем Абукумы, Мано, Нитта, Ота, Укедо, Маеда, Ку-ма, которые впадают в Тихий океан, и на которых проводились исследования вертикального распределения ^{137}Cs в донных отложениях. Профили вертикального распределения ^{137}Cs в донных отложениях, отобранных на р. Укедо, показывают, что максимальные значения удельной активности ^{137}Cs получены в поверхностных слоях 0–2 см в первые годы после аварии. В настоящее время максимальные значения удельной активности ^{137}Cs наблюдаются в слоях ниже 8 см, а в верхних слоях – эти значения значительно ниже, что может свидетельствовать о меньшем поступлении радионуклида в последующие после аварии годы. В реках Абукума и Нитта в первые годы после аварии также были обнаружены максимумы удельных активностей в поверхностных слоях донных отложений, однако их значения и глубина варьировались. В частности, в р. Абукума максимумы были зарегистрированы на глубине 2–4 см, что может указывать на различные тенденции в динамике осаждения и миграции радионуклидов, зависящие от геоморфологических и гидрологических характеристик этих водоемов [9].

К радиоактивному загрязнению обширных территорий также привели испытания ядерного оружия. Один из крупнейших полигонов для проведения ядерных испытаний – Семипалатинский испытательный полигон (СИП). На территории СИП расположены различные типы водных объектов, представленные водоемами природного и техногенного происхождения, а также водотоки. Основные водотоки территории СИП – это ручьи площадки «Дегелен» и р. Шаган. В ранее проведенных исследованиях было установлено, что воды р. Шаган характеризуются довольно сложной системой тритиевого загрязнения за счет наличия нескольких источников загрязнения радионуклидом, которые отличаются механизмами поступления в воды р. Шаган [10].

Бывшая испытательная площадка «Дегелен» использовалась для проведения подземных ядерных испытаний средней и малой мощности. В период с 1961 по 1989 гг. было проведено более 200 ядерных испытаний в 181 штольне (шт.), которые расположены в горном массиве Дегелен. В результате этого на сравнительно небольшой площади сконцентрировано огромное количество радиоактивных продуктов, представляющих большую опасность для окружающей среды [11]. Штольни представляют собой горизонтальную выработку в гранитном массиве горы, их длина варьирует от нескольких сотен метров до 2 км. При этом диаметр ствола выработки штолен составляет около 3 м [12].

Несмотря на закрытие испытательных штолен на горном массиве Дегелен, спустя более 30 лет продолжается вынос радионуклидов из штолен с водопроявлениями и накопление их в руслах водотоков. Основными особенностями радиоактивного загрязнения, является значительная концентрация техногенных

радионуклидов по берегам водотоков [13, 14]. Максимальных значений радиоактивное загрязнение достигает, как правило, вблизи штолен, постепенно снижаясь по мере удаления от них. При этом, наблюдается ярко выраженная зависимость содержания радионуклидов в почве и в воде в зависимости от удаления от портала штольни. Основным механизмом переноса радионуклидов за пределы горного массива является их миграция по водным артериям Дегелена – ручьям, которые находятся в зоне влияния водотоков из штолен [15]. В пойме штольневых водотоков содержание отдельных радионуклидов в воде, почве, растительности значительно превышает допустимые уровни. Содержание ^{137}Cs и ^{90}Sr на выходе водотока из портала штольни может достигать значений до $n \cdot 10^5$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – до $n \cdot 10^3$ Бк/кг, ^3H – до $n \cdot 10^5$ Бк/кг [16]. Наряду с исследованиями содержания радионуклидов в компонентах экосистем проводились исследования горизонтальной и вертикальной миграций техногенных радионуклидов в почвах и донных отложениях водотоков из шт. 176 и шт. 177. В результате исследований было выявлено, что наибольшим проникновением в глубину почвенного профиля обладает ^{90}Sr , менее значительно распределяется ^{137}Cs , и наименее подвижными по вертикали являются $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am [17, 18]. Несмотря на значительные успехи в изучении миграции радионуклидов в почвах, донные отложения, как одни из главных источников информации о состоянии водных объектов, требуют отдельного внимания. Различия физико-химических свойств среды и гидродинамических условий водотоков приводят к различным механизмам миграции и аккумуляции радионуклидов, что обуславливает необходимость детального анализа их вертикального распределения в донных отложениях.

С момента закрытия СИП получен большой объем информации относительно текущей радиационной обстановки на территории площадки «Дегелен», исследовано распределение радионуклидов в воде [19, 20], почве [21], воздухе [22, 23], атмосферных осадках [24], растениях [25] и животных [26].

Целью данной работы является исследование вертикального распределения техногенных радионуклидов в донных отложениях ручьев испытательной площадки «Дегелен».

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для исследования вертикального распределения радионуклидного загрязнения в донных отложениях выбраны ручьи испытательной площадки «Дегелен»: Байтлес, Токтакушук, Узынбулак и Карабулак (рисунок 1). Выбор данных ручьев обусловлен их генетической связью с водотоками из штолен: руч. Байтлес – с водотоками шт. 176 и 609; Токтакушук – с водотоком шт. 165; руч. Узынбулак – с водотоками шт. 177, 104 и 802; и руч. Карабулак – с водотоком шт. 511.



руч. Байтлес



руч. Токтакушык



руч. Узынбулак



руч. Карабулак

Рисунок 1. Исследуемые водотоки площадки «Дегелен»

Точки отбора проб были расположены в зоне выхода ручьев за пределы границы площадки «Дегелен», в заводях с малым движением водных масс, где про-

цесс накопления поступающих радионуклидов усилен. Данное расположение точек позволяет оценить не только особенности и специфику накопления радионуклидов, но и насколько глубоко возможно загрязнение на данной территории с учетом существующего выноса радионуклидов с водами ручьев за пределы площадки. Процессы накопления радионуклидов в донных отложениях под воздействием малого движения стока воды могут привести к увеличению удельных активностей радионуклидов в определенных слоях донных отложений.

Отбор проб донных отложений для исследования вертикального распределения радионуклидов производили в виде ненарушенной колонки цилиндрическим пробоотборником, который состоит из двух половин, благодаря которым можно легко извлечь пробы. Размеры пробоотборника (рисунок 2) составляли: внутренний диаметр – 5 см; высота цилиндра – 30 см. На изголовье пробоотборника предусмотрена металлическая заслонка, предотвращающая выпадение пробы при отборе.



Рисунок 2. Пробоотборник для отбора проб донных отложений в виде колонки

Отбор проводили на открытом месте без растительности и визуального разрушения поверхностного слоя. Процесс отбора был затруднен тем, что дно русла водотоков местами выложено скальными породами и проросло корневой системой водных и прибрежных растений. Точки отбора проб представлены на рисунке (рисунок 3).

Отбор колонок донных отложений был произведен точно. Высота отобранных колонок составляла до 10–13 см. Разделение колонок донных отложений на слои проводили сразу на местах отбора. Толщина одного слоя составляла 10–12 мм, масса 0,030–0,035 кг. В отобранных пробах проводилось определение содержания ^3H , ^{241}Am , ^{137}Cs и ^{90}Sr . Также для оценки радиоактивного загрязнения исследуемых объектов, в точках отбора колонок донных отложе-

ний производился сопряженный отбор проб воды, в которых проводилось определение тех же радионуклидов.

Для определения ^3H в свободной воде донных отложений проводилась дистилляция отобранных проб в специально подготовленной установке [27, 28]. Для этого пробу помещали в круглодонную колбу и устанавливали в колбонагреватель. Процесс дистилляции донных отложений проводили при температуре $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ до полного прекращения образования дистиллята. Из полученного дистиллята отбирали аликвоту объемом 5 мл, добавляли сцинтилятор «ULTIMA GOLD» в соотношении 1:3, и проводили измерения на жидкосцинтиляционном спектрометре «TRICARB 2900 TR» фирмы «PerkinElmer» (США) в течение не менее 120 мин. Минимальная детектируемая активность (МДА) ^3H в свободной воде составила 0,1 Бк/кг.

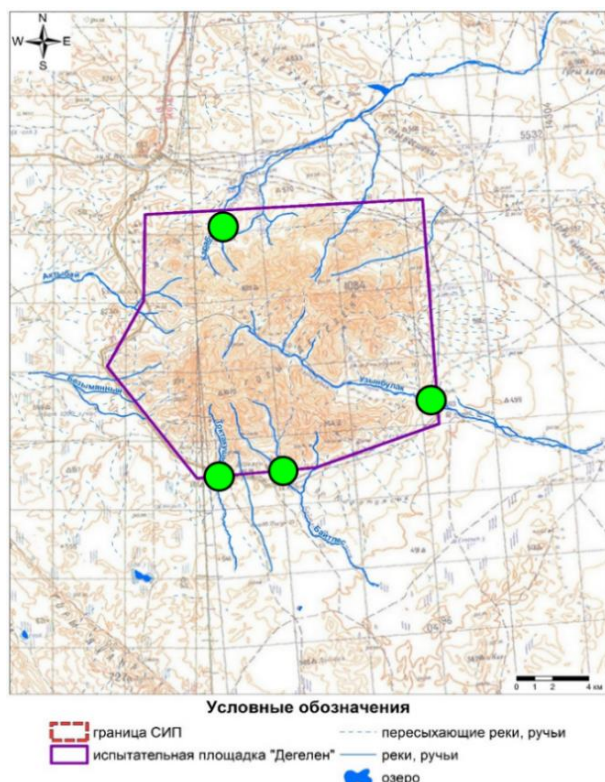


Рисунок 3. Расположение точек отбора проб донных отложений на исследуемых водотоках

Для определения прочносвязанного ^3H проводилось полное разложение донных отложений, т.е. с разрушением кристаллической решетки минерала, что достигалось методом автоклавного разложения [29], которое заключается в разложении образцов (с разрушением матрицы) под воздействием температуры и давления в герметично замкнутом объеме. С этой целью после проведения процесса дистилляции, пробы донных отложений постепенно (порциями) растирали пестиком в фарфоровой ступке и просеивали через сито с диаметром отверстий 1 мм [30].

Из полученного объема отбиралась навеска массой $2\pm 0,001\text{ г}$ и помещалась в тefлоновую реакционную камеру. Автоклавирование проводилось под действием смеси концентрированных кислот HNO_3 и HF в соотношении 3:7 при температуре $160\pm 5\text{ }^{\circ}\text{C}$ в течение 2,5 часов. Измерение содержания ^3H в прочносвязанной форме проводилось также, как и ^3H в свободной воде, после процесса дистилляции. МДА ^3H в прочносвязанной форме – 50 Бк/кг.

Остальной объем пробы донных отложений использовался для γ -спектрометрических измерений для определения содержания ^{241}Am и ^{137}Cs на γ -спектрометре фирмы «ORTEC» (США) с полупроводниковым детектором с кристаллом из сверхчистого германия и анализатором импульсов. МДА ^{241}Am и ^{137}Cs – 1 Бк/кг.

Радиохимическое выделение ^{90}Sr из проб донных отложений включало следующие этапы: введение изотопной метки ^{85}Sr ; полное кислотное разложение пробы; выделение и радиохимическая очистка изотопов Sr; двухнедельное накопление ^{90}Y , его выделение и измерение активности. Удельную активность ^{90}Sr в пробах донных отложений определяли по дочернему продукту ^{90}Y с помощью β -спектрометра «Quantulus 1220». МДА ^{90}Sr – 1 Бк/кг [31].

Неопределенность рассчитывалась с учетом среднеквадратического отклонения набранных импульсов в спектре измеряемой пробы и с учетом погрешностей лабораторной измерительной посуды, используемой на всех этапах пробоподготовки. В среднем неопределенность составила 10%.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты определения содержания техногенных радионуклидов в воде ручьев площадки «Дегелен» представлены в таблице 1.

Таблица 1. Содержание техногенных радионуклидов в воде ручьев площадки «Дегелен»

Место отбора	Удельная активность, Бк/кг			
	^{241}Am	^{137}Cs	^3H	^{90}Sr
руч. Узынбулак	<0,03	$0,19\pm 0,02$	$(3,5\pm 0,3)\cdot 10^4$	$0,7\pm 0,02$
руч. Байтлес	<0,03	<0,01	$(5,0\pm 0,5)\cdot 10^4$	$0,8\pm 0,01$
руч. Токтакушык	<0,03	<0,01	$(5,9\pm 0,5)\cdot 10^4$	$0,9\pm 0,01$
руч. Карабулак	<0,03	$0,14\pm 0,01$	$(2,4\pm 0,2)\cdot 10^3$	$0,2\pm 0,02$

Согласно полученным результатам, основным загрязняющим радионуклидом вод ручьев является ^3H , содержание которого находится на уровне $n\cdot 10^3$ – $n\cdot 10^4$ Бк/кг. Содержание ^{241}Am во всех отобранных пробах воды находится ниже предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения (<0,03 Бк/кг). Численные значения содержания ^{90}Sr зафиксированы в воде всех ручьев на уровне $n\cdot 10^{-1}$ Бк/кг. Численные значения содержания ^{137}Cs зафиксированы в воде ручьев Узынбулак и Карабулак на уровне $n\cdot 10^{-1}$ Бк/кг, в воде двух других ручьев содержание данного радионуклида находится ниже предела обнаружения.



Рисунок 4. Вертикальное распределение ^{137}Cs , ^3H (в прочносвязанной форме и в форме свободной воды) и ^{90}Sr в донных отложениях руч. Узынбулак

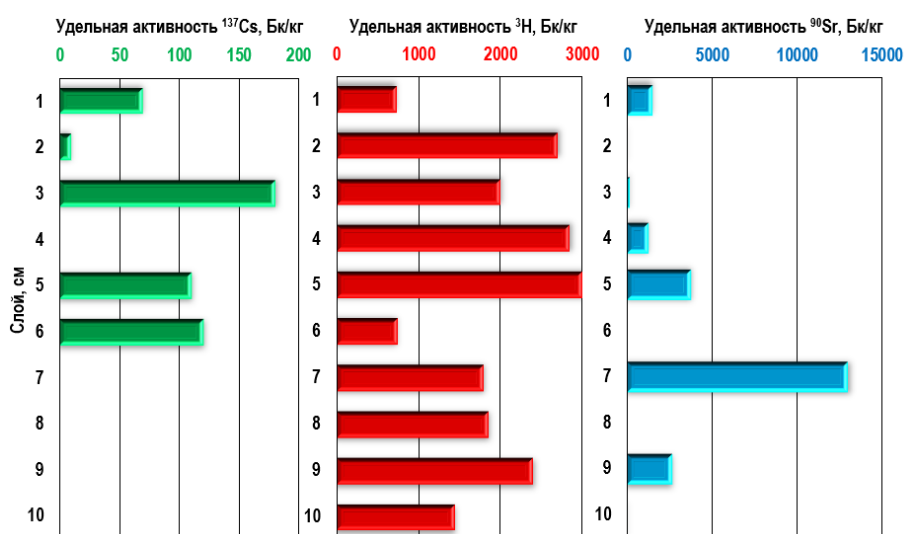


Рисунок 5. Вертикальное распределение ^{137}Cs , ^3H (в прочносвязанной форме) и ^{90}Sr в донных отложениях руч. Байтлес

По результатам исследования вертикального распределения техногенных радионуклидов в донных отложениях ручьев содержание ^{241}Am во всех отобранных пробах находится ниже предела обнаружения используемого аппаратно-методического обеспечения (< 1 Бк/кг).

На основании полученных данных содержания радионуклидов в образцах донных отложений построены гистограммы, описывающие распределение радионуклидов по вертикали (рисунки 4–7). Количество слоев соответствует количеству образцов для каждого объекта исследования.

Для сравнительного анализа вертикального распределения в донных отложениях ^3H в двух формах был выбран ручей Узынбулак. Долина ручья имеет наиболее крупную площадь водосбора. Радионуклид ^3H является основным загрязняющим радионуклидом долины ручья, удельная активность которого в воде на границе испытательной площадки достигает порядка $3 \cdot 10^4$ Бк/кг.

Согласно полученным данным, содержание ^3H в свободной воде варьирует в диапазоне от 6400 ± 640 Бк/кг до 21000 ± 2100 Бк/кг. Наблюдается его хаотичное распределение по всей глубине и не позволяет выявить четких закономерностей. В связи с этим, определение ^3H в свободной воде на всех точках является нецелесообразным, так как не характеризует вертикальное распределение в донных отложениях. Содержание ^3H в прочносвязанной форме достигает уровня 4100 ± 400 Бк/кг. Численные значения удельной активности радионуклида ^{137}Cs получены в 6 слоях. Максимальное значение удельной активности ^{137}Cs зафиксировано на глубине 2 см и составляет 110 ± 10 Бк/кг. Значения содержания ^{90}Sr получены по всей глубине в диапазоне от 90 ± 9 Бк/кг до 200 ± 20 Бк/кг. Пик активности для ^3H в прочносвязанной форме и ^{90}Sr приходится на глубину 5 см.

В образцах донных отложений руч. Байтлес (рисунок 5) получены численные значения удельной активности радионуклида ^{137}Cs в 5 слоях, которые варьируют от 10 ± 1 Бк/кг до 180 ± 20 Бк/кг, при этом

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВЕРТИКАЛЬНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ
В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ ВОДОТОКОВ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»**

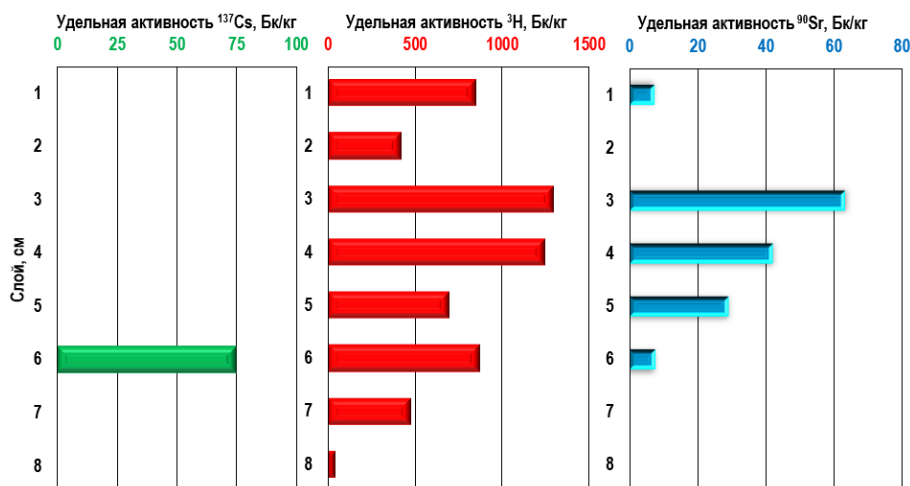


Рисунок 6. Вертикальное распределение ^{137}Cs , ^3H (в прочносвязанной форме) и ^{90}Sr в донных отложениях руч. Токтакушык

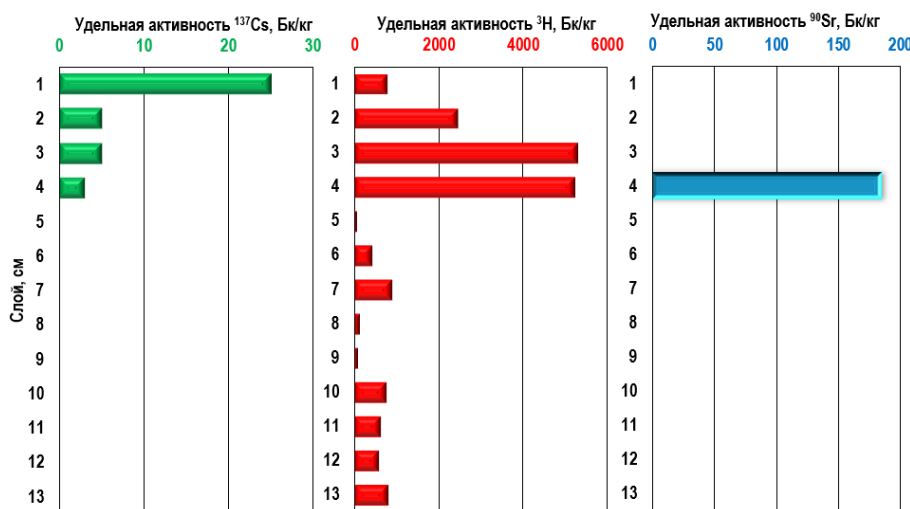


Рисунок 7. Вертикальное распределение ^{137}Cs , ^3H (в прочносвязанной форме) и ^{90}Sr в донных отложениях руч. Карабулак

максимальное значение данного радионуклида зафиксировано на глубине 3 см. Вертикальное распределение ^3H в прочносвязанной форме и ^{90}Sr наблюдается по всей глубине, численные значения для ^3H изменяются в диапазоне от 750 ± 80 Бк/кг до 3000 ± 300 Бк/кг, для ^{90}Sr – от 1500 ± 500 Бк/кг до 13000 ± 2000 Бк/кг. На вертикальном профиле ^3H ярко выраженный пик активности отсутствует, а в профиле ^{90}Sr приходится на глубину 7 см.

Численное значение удельной активности ^{137}Cs полученное для руч. Токтакушык (рисунок 6) зафиксировано только на глубине 6 см и составило 75 ± 8 Бк/кг. На гистограмме распределения ^3H в прочносвязанной форме максимальные значения зафиксированы на глубине 3 и 4 см и составляют порядка 1300 ± 150 Бк/кг. Численные значения удельной активности ^{90}Sr получены в 5 слоях, которые варьируют от 8 ± 1 Бк/кг до 65 ± 9 Бк/кг, при этом максимальное значение данного радионуклида зафиксировано на глубине 3 см.

Значения удельной активности ^{137}Cs в донных отложениях руч. Карабулак (рисунок 7) получены на глубине 1–4 см, пик активности приходится на поверхностный слой и составляет 25 ± 3 Бк/кг. Максимумы удельной активности ^3H в прочносвязанной форме зафиксированы на глубине 3–4 см и составляют порядка 5300 ± 530 Бк/кг. Численное значение удельной активности ^{90}Sr зафиксировано только в слое 4 см и составило 185 ± 30 Бк/кг.

Согласно полученным результатам, ^3H в прочносвязанной форме проникает по всему профилю донных отложений и фиксируется во всех слоях всех исследуемых ручьев из-за его высокой миграционной способности. Радионуклид ^{90}Sr по сравнению с ^{137}Cs обладает более высокой миграционной способностью, проникая на большую глубину (для руч. Узунбулак и Байтлес), либо проникая до одного уровня с ^{137}Cs (для руч. Токтакушык и Карабулак).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных работ установлено, что максимальные значения содержания ^{137}Cs зафиксированы преимущественно в поверхностных слоях от 1 до 3 см, за исключением донных отложений руч. Токтакушук, где численное значение содержания ^{137}Cs зафиксировано только на глубине 6 см, и руч. Байтлес, где повышенные значения содержания ^{137}Cs достигают глубины 6 см. Содержание ^{241}Am в донных отложениях всех исследованных объектов находится ниже предела обнаружения. Максимальные значения содержания ^{90}Sr зафиксированы в слоях 3–5 см, а в донных отложениях руч. Байтлес – на глубине 7 см.

Вертикальное распределение ^3H в двух формах (в свободной воде и прочносвязанной форме) имеет различный характер. В донных отложениях руч. Узынбулак ^3H в свободной воде хаотично распределяется по всему профилю из-за его высокой миграционной способности, и имеет не ярко выраженный пик на глубине 6 см, в отличие от прочносвязанной формы. Максимальные значения ^3H в прочносвязанной форме в донных отложениях всех ручьев зафиксированы на глубине 3–5 см.

Различия вертикальных профилей распределения радионуклидов в первую очередь обусловлены свойствами самих радионуклидов. Основополагающим фактором вертикального распределения радионуклида может служить его растворимость и подвижность.

Данные исследования финансировались Министерством энергетики Республики Казахстан в рамках научно-технической программы BR24792713 «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан».

ЛИТЕРАТУРА

1. Живов А. А. Радионуклидное загрязнение пресных водных объектов вследствие сбросов радиоактивных отходов и радиационных аварий // Научные и образовательные проблемы гражданской защиты. – 2014. – № 1. – С. 54–60.
2. Коновалова Э.Е. Анализ зарубежных методик оценки содержания тяжелых металлов в донных отложениях рек // Международный студенческий научный вестник. – 2018. – Выпуск № 2. – ISSN 2409-529X.
3. Прохоров А. В. Моделирование миграции радионуклидов в почве // Актуальные проблемы гуманитарных и естественных наук. – 2013. – № 3. – С. 21–23.
4. Казачёнок Н.Н., Попова И.Я., Мельников В.С., Поляничкова Г.В., Тихова Ю.П., Коновалов К.Г., Копелов А.И. ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ в системе реки Теча // Вода: химия и экология. – 2013. – № 11. – С. 10–15.
5. Воронов С. И., Седнев В. А. Авария на Сибирском химическом комбинате: последствия и выводы для обеспечения безопасности населения и устойчивости функционирования // Научные и образовательные проблемы гражданской защиты. – 2016. – № 3 (30). – С. 3–9.
6. Лунёва К.В., Крышев А.И. Анализ радиозоологического воздействия Красноярского горно-химического

комбината на объекты речной биоты в 2000–2012 гг. // Радиация и риск. – 2014. – Т. 23. – № 1. – С. 89–96.

7. Мирошников А.Ю., Флинт М.В., Асадулин Э.Э., Комаров В.Б. Радиационно-геохимическая устойчивость донных осадков в эстуариях Оби и Енисея и на прилегающем мелководье Карского моря // Океанология. – 2020. – Т. 60. – № 6. – С. 930–944.
8. Коноплев А.В., Каневец В.И., Жукова О.М., Герменчук М.Г., Деркач Г.А. Полуэмпирическая диффузионная модель смыва радионуклидов с загрязненных водосборов и ее проверка на основе данных мониторинга рек Фукусимы и Чернобыля // Геохимия. – 2021. – Т. 66. – № 6. – С. 550–561.
9. Konoplev A., Wakiyama Y., Wada T., Ivanov M., Komissarov M., Nanba K. Reconstruction of time changes in radiocesium concentrations in the river of the Fukushima Dai-ichi NPP contaminated area based on its depth distribution in dam reservoir's bottom sediments // Environmental Research. – 2022. – P. 112307.
10. Актаев М.Р., Айдарханов А.О., Айдарханова А.К., Пронин С.С., Искенов А.О. Мониторинг тритиевого загрязнения вод р. Шаган // Вестник НЯЦ РК. – 2021. – № 2. – P. 25–29. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-2-25-29>
11. Ахметов М.А., Артемьев О.И., Птицкая Л.Д., Синяев В.А. Радиационный мониторинг водотоков и проблемы реабилитации нагорном массиве Дегелен Семипалатинского испытательного полигона // Вестник НЯЦ РК. – 2000. – № 3. – С. 23–28.
12. Акчурин И.А. Семипалатинский ядерный полигон: создание, становление, деятельность. – М.: М-во обороны Российской Федерации, 12 Центральный научно-исследовательский институт. – 2007. – 225 с.
13. Паницкий А.В. Миграция техногенного радионуклида ^{137}Cs в долине ручья Тахтакушук низкогогорного массива Дегелен // Вестник НЯЦ РК. – 2005. – № 4(24). – С. 96–101.
14. Субботин С.Б., Дубасов Ю.В. Радиоактивное загрязнение водной среды горного массива Дегелен // Радиохимия. – 2013. – Т. 55, Вып. 6. – С. 561–567.
15. Магашева Р.Ю., Султанова Б.М., Паницкий А.В. Характеристика почвенно-растительного покрова испытательной площадки «Дегелен» // Вестник НЯЦ РК. – 2013. – № 4. – С. 32–42.
16. Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Тимонова Л.В., Бурдакина О.В. Современные уровни активности искусственных радионуклидов в объектах водопользования, расположенных на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП) // Радиационная биология. Радиоэкология. – 2017. – Т. 57. – № 1. – С. 77–85.
17. Паницкий А.В., Лукашенко С.Н. Характер перераспределения радионуклидов в системе вода-почва в экосистемах, сопряженных с радиоактивно-загрязненными водотоками из штолен, на испытательной площадке «Дегелен» Семипалатинского испытательного полигона // Радиация и риск. – 2013. – Т. 22. – № 4 – С. 74–79.
18. Panitskiy A.V., Lukashenko S.N. Nature of radioactive contamination of components of ecosystems of streamflows from tunnels of Degelen massif // Journal of Environmental Radioactivity. – 2015. – Vol. 144. – P. 32–40. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.02.021>
19. Айдарханова А.К., Лукашенко С.Н. Современные уровни загрязнения и характер распределения радионуклидов в системе «вода – донные отложения» вод-

- ных объектов территории Семипалатинского испытательного полигона и прилегающих территорий // Радиационная биология. Радиоэкология. – Москва. – 2017, – Т. 57, – № 3, – С. 286–296.
<https://doi.org/10.7868/S0869803117030067>
20. Мухамедияров Н.Ж., Макарычев С.В., Колбин В.В., Дюсембаева М.Т., Шакинов Е.З., Есильканов Г.М., Темирганова А.Е., Ташекова А.Ж., Умаров М.А. Исследование пространственного распределения элементов в системе «вода – донные отложения» ручья Узынбулак Семипалатинского испытательного полигона // Известия Саратовского университета. – 2022. – Т. 22, вып. 4. – С. 235–242. <https://doi.org/10.18500/1819-7663-2022-22-4-235-242>
 21. Panitskiy, A.V., Lukashenko, S.N., Magasheva, R.Y. Particularities of radionuclides' vertical distribution in soils of former Semipalatinsk test site // J. Fundamental research. – 2013. – No. 10. – P. 2231–2236. <http://www.fundamental-research.ru/ru/article/view?id=32742>
 22. Ляхова О.Н., Ларионова Н.В., Лукашенко С.Н. К вопросу о путях миграции трития за пределы бывшей испытательной площадки «Дегелен» // Радиация и Риск. – 2014. – Т. 23, № 1. – С. 97–104.
 23. Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Тимонова Л.В., Ларионова Н.В., Турченко Д.В. Оценка уровня концентрации газообразных соединений трития в местах проведения ядерных испытаний на территории Семипалатинского испытательного полигона // Радиационная биология. Радиоэкология. – 2020. – Т. 60, № 6. – С. 646–657.
 24. Turchenko D.V., Lukashenko S.N., Aidarkhanov A.O., Lyakhova O.N. Studying of tritium content in snowpack of Degelen mountain range // Journal of Environmental Radioactivity. – 2014. – Vol. 132. – P. 115–120. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.01.017>
 25. Larionova, N.V., Lukashenko, S.N., Kabdyrakova, A.M., Kunduzbayeva, A.Y., Panitskiy, A.V., Ivanova, A.R. Transfer of radionuclides to plants of natural ecosystems at the Semipalatinsk Test Site // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – Vol. 186. – P. 163–170. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.09.006>
 26. Panitskiy A., Bazarbaeva A., Baigazy S., Alexandrovich I., Larionova N. Radioecological characteristics of Siberian roe deer (*Capreolus pygargus* Pal., 1771) inhabiting locations of nuclear weapon tests // PLoS ONE. – 2024. – Vol. 19(9). – P. 0308518. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0308518>
 27. Сержанова З.Б., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Койшыбаев Р.А. Оптимизация методов исследования тритиевого загрязнения почв с учетом особенностей СИП // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – № 4. – С. 49–53. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2018-4-49-53>
 28. Serzhanova, Z.B., Aidarkhanova, A.K., Lukashenko, S.N., Lyakhova, O.N., Timonova, L.V., Raimkanova A.M. Researching of tritium speciation in soils of «Balapan» site // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – Vol. 192. – P. 621–627. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.02.016>
 29. Сержанова З.Б., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Тимонова Л.В., Раимканова А.М. Методические подходы для исследования связанных форм нахождения трития в почвах радиоактивно-загрязненных участков Семипалатинского испытательного полигона // Вестник НЯЦ РК. – 2020. – № 2. – С. 41–48. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2020-2-41-48>
 30. ГОСТ 29269-91 «Почвы. Общие требования к проведению анализов». – М.: Изд-во стандартов, 1992. – 6 с.
 31. Методика определения содержания искусственных радионуклидов $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{90}Sr в объектах окружающей среды (почвах, грунтах, донных отложениях и растениях): KZ.07.00.00471-2005. – Алматы: Изд-во стандартов, 2010. – 24 с.

REFERENCES

1. Zhivov A. A. Radionuklidnoe zagryaznenie presnykh vodnykh ob'ektov vsledstvie sbrosov radioaktivnykh otkhodov i radiatsionnykh avariï // Nauchnye i obrazovatel'nye problemy grazhdanskoï zashchity. – 2014. – No. 1. – P. 54–60.
2. Konovalova E.E. Analiz zarubezhnykh metodik otsenki soderzhaniya tyazhelykh metallov v donnykh otlozheniyakh rek / Mezhdunarodnyy studentcheskiy nauchnyy vestnik. – 2018. – Issue 2. – ISSN 2409-529X.
3. Prokhorov A. V. Modelirovanie migratsii radionuklidov v pochve // Aktual'nye problemy gumanitarnykh i estestvennykh nauk. – 2013. – No. 3. – P. 21–23.
4. Kazachenok N.N., Popova I.Ya., Mel'nikov V.S., Polyanchikova G.V., Tikhova Yu.P., Konovalov K.G., Kopelov A.I. ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ v sisteme reki Techa // Voda: khimiya i ekologiya. – 2013. – No. 11. – P. 10–15.
5. Voronov S. I., Sednev V. A. Avariya na Sibirskom khimicheskom kombinat: posledstviya i vyvody dlya obespecheniya bezopasnosti naseleniya i ustoychivosti funktsionirovaniya // Nauchnye i obrazovatel'nye problemy grazhdanskoï zashchity. – 2016. – No. 3 (30). – P. 3–9.
6. Luneva K.V., Kryshev A.I. Analiz radioekologicheskogo vozdeystviya Krasnoyarskogo gorno-khimicheskogo kombinata na ob'ekty rechnoy bioty v 2000–2012 gg. // Radiatsiya i risk. – 2014. – Т. 23. – No. 1. – P. 89–96.
7. Miroshnikov A.Yu., Flint M.V., Asadulin E.E., Komarov V.B. Radiatsionno-geokhimicheskaya ustoychivost' donnykh osadkov v estuariyakh Obi i Eniseya i na prilgayushchem melkovod'e Karskogo morya // Okeanologiya. – 2020. – Т. 60. – No. 6. – P. 930–944.
8. Konoplev A.V., Kanivets V.I., Zhukova O.M., Germenchuk M.G., Derkach G.A. Poluempiricheskaya diffuzionnaya model' smyva radionuklidov s zagryaznennykh vodosborov i ee proverka na osnove dannykh monitoringa rek Fukusimy i Chernobylya // Geokhimiya. – 2021. – Т. 66. – No. 6. – P. 550–561.
9. Konoplev A., Wakiyama Y., Wada T., Ivanov M., Komissarov M., Nanba K. Reconstruction of time changes in radiocesium concentrations in the river of the Fukushima Dai-ichi NPP contaminated area based on its depth distribution in dam reservoir's bottom sediments // Environmental Research. – 2022. – P. 112307.
10. Aktaev M.R., Aydarkhanov A.O., Aydarkhanova A.K., Pronin S.S., Iskenov A.O. Monitoring of tritium pollution of the Shagan river waters // NNC RK Bulletin. – 2021. – No. 2. – P. 25–29. (In Russ.) <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-2-25-29>
11. Akhmetov M.A., Artem'ev O.I., Ptitskaya L.D., Sinyayev V.A. Radiation monitoring of water flows and rehabilitation of Degelen mountain massif at Semipalatinsk test site // NNC RK Bulletin. – 2000. – No. 3. – P. 23–28. (In Russ.)

12. Akchurin I.A. Semipalatinskiy yadernyy poligon: sozдание, stanovlenie, deyatelnost'. – Moscow: M-vo oborony Rossiyskoy Federatsii, 12 Tsentral'nyy nauchno-issledovatel'skiy institut. – 2007. – 225 p.
13. Panitskiy A.V. Migration of ^{137}Cs artificial radionuclide in the valley of the Takhtakushuk river of the Degelen massif // NNC RK Bulletin. – 2005. – No. 4(24). – P. 96–101. (In Russ.)
14. Subbotin S.B., Dubasov Yu.V. Radioaktivnoe zagryaznenie vodnoy sredy gornogo massiva Degelen // Radiokhimiya. – 2013. – T. 55, Issue 6. – P. 561–567.
15. Magasheva R.Yu., Sultanova B.M., Panitskiy A.V. Description of soil-plant cover on “Degelen” site // NNC RK Bulletin. – 2013. – Issue 4. – P. 32–42. (In Russ.)
16. Lyakhova O.N., Lukashenko S.N., Timonova L.V., Burdakina O.V. Sovremennyye urovni aktivnosti iskusstvennykh radionuklidov v ob'ektakh vodopol'zovaniya, raspolozhennykh na territorii Semipalatinskogo ispytatel'nogo poligona (SIP) // Radiatsionnaya biologiya. Radioekologiya. – 2017. – T. 57. – No. 1. – P. 77–85.
17. Panitskiy A.V., Lukashenko S.N. Kharakter pereraspredeleniya radionuklidov v sisteme voda-pochva v ekosistemakh, sopryazhennykh s radioaktivno-zagryaznennymi vodotokami iz shtolen, na ispytatel'noy ploshchadke “Degelen” Semipalatinskogo ispytatel'nogo poligona // Radiatsiya i risk. – 2013. – T. 22. – No. 4 – P. 74–79.
18. Panitskiy A.V., Lukashenko S.N. Nature of radioactive contamination of components of ecosystems of stream-flows from tunnels of Degelen massif // Journal of Environmental Radioactivity. – 2015. – Vol. 144. – P. 32–40. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.02.021>
19. Aydarkhanova A.K., Lukashenko S.N. Sovremennyye urovni zagryazneniya i kharakter raspredeleniya radionuklidov v sisteme “voda – donnye otlozheniya” vodnykh ob'ektov territorii Semipalatinskogo ispytatel'nogo poligona i prilgayushchikh territoriy // Radiatsionnaya biologiya. Radioekologiya. – Moscow. – 2017, – T. 57, No. 3. – P. 286–296. <https://doi.org/10.7868/S0869803117030067>
20. Mukhamediyarov N.Zh., Makarychev S.V., Kolbin V.V., Dyusembaeva M.T., Shakenov E.Z., Esil'kanov G.M., Temirzhanova A.E., Tasheva A.Zh., Umarov M.A. Issledovanie prostranstvennogo raspredeleniya elementov v sisteme “voda – donnye otlozheniya” ruch'ya Uzynbulak Semipalatinskogo ispytatel'nogo poligona // Izvestiya Saratovskogo universiteta. – 2022. – T. 22, Issue 4. – P. 235–242. <https://doi.org/10.18500/1819-7663-2022-22-4-235-242>
21. Panitskiy, A.V., Lukashenko, S.N., Magasheva, R.Y. Particularities of radionuclides' vertical distribution in soils of former Semipalatinsk test site // J. Fundamental research. – 2013. – No. 10. – P. 2231–2236. <http://www.fundamental-research.ru/ru/article/view?id=32742>
22. Lyakhova O.N., Larionova N.V., Lukashenko S.N. K voprosu o putyakh migratsii tritiya za predely byvshey ispytatel'noy ploshchadki «Degelen» // Radiatsiya i Risk. – 2014. – T. 23, No. 1. – P. 97–104.
23. Lyakhova O.N., Lukashenko S.N., Timonova L.V., Larionova N.V., Turchenko D.V. Otsenka urovnya kontsentratsii gazoobraznykh soedineniy tritiya v mestakh provedeniya yadernykh ispytaniy na territorii Semipalatinskogo ispytatel'nogo poligona // Radiatsionnaya biologiya. Radioekologiya. – 2020. – T. 60, No. 6. – P. 646–657.
24. Turchenko D.V., Lukashenko S.N., Aidarkhanov A.O., Lyakhova O.N. Studying of tritium content in snowpack of Degelen mountain range // Journal of Environmental Radioactivity. – 2014. – Vol. 132. – P. 115–120. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.01.017>
25. Larionova, N.V., Lukashenko, S.N., Kabdyrakova, A.M., Kunduzbayeva, A.Y., Panitskiy, A.V., Ivanova, A.R. Transfer of radionuclides to plants of natural ecosystems at the Semipalatinsk test site // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – Vol. 186. – P. 163–170. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.09.006>
26. Panitskiy A., Bazarbaeva A., Baigazy S., Alexandrovich I., Larionova N. Radioecological characteristics of Siberian roe deer (*Capreolus pygargus* Pal., 1771) inhabiting locations of nuclear weapon tests // PLoS ONE. – 2024. – Vol. 19(9). – P. 0308518. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0308518>
27. Serzhanova Z.B., Aydarkhanova A.K., Lyakhova O.N., Koyshybaev R.A. Optimizing methods for researching into soil contamination with tritium given STS features // NNC RK Bulletin. – 2018. – Issue. 4. – P. 49–53. (In Russ.) <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2018-4-49-53>
28. Serzhanova, Z.B., Aidarkhanova, A.K., Lukashenko, S.N., Lyakhova, O.N., Timonova, L.V., Raimkanova A.M. Researching of tritium speciation in soils of «Balapan» site // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – Vol. 192. – P. 621–627. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.02.016>
29. Serzhanova Z.B., Aydarkhanova A.K., Lyakhova O.N., Timonova L.V., Raimkanova A.M. Methodological approaches to research into tritium bound speciation in soils of radioactively contaminated areas at Semipalatinsk Test Site // NNC RK Bulletin. – 2020. – Issue 2. – P. 41–48. (In Russ.) <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2020-2-41-48>
30. GOST 29269-91 «Pochvy. Obshchie trebovaniya k provedeniyu analizov». – Moscow: Izd-vo standartov, 1992. – 6 p.
31. Metodika opredeleniya soderzhaniya iskusstvennykh radionuklidov $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{90}Sr v ob'ektakh okruzhayushchey sredy (pochvakh, gruntakh, donnykh otlozheniyakh i rasteniyakh): KZ.07.00.00471-2005. – Almaty: Izd-vo standartov, 2010. – 24 p.

**«ДЕГЕЛЕН» АЛАҒЫНЫҢ АҒЫН СУЛАРЫНЫҢ ТҮПТІК ШӨГІНДІЛЕРІНДЕ
ТЕХНОГЕНДІК РАДИОНУКЛИДТЕРДІҢ ТІГІНЕН ТАРАЛУЫН ЗЕРТТЕУ**

Р. Г. Ермакова*, А. К. Айдарханова, Ж. Е. Тлеуканова, А. С. Мамырбаева

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

** Байланыс үшін E-mail: lavrikova@nnc.kz*

Мақалада Семей сынақ полигонының бұрынғы «Дегелен» сынақ алаңының ағын суларының түптік шөгінділерінде радионуклидтердің тігінен таралуын зерттеу деректері келтірілген. Осы зерттеулер шеңберінде бұзылмаған бағандар түрінде түптік шөгінділердің сынақтарын іріктеу жұмыстары жүргізілді. Радионуклидтер құрамының алынған деректері негізінде түптік шөгінділердің үлгілерінде радионуклидтердің тігінен таралуын сипаттайтын гистограммалар құрылды. ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{90}Sr және ^3H техногендік радионуклидтердің таралуы қарастырылды. ^{241}Am <ПО мазмұны барлық таңдалған үлгілерде болып табылады. ^{137}Cs және ^{90}Sr құрамы сәйкесінше 3 ± 1 бастап 180 ± 20 Бк/кг дейін және 10 ± 1 бастап 13000 ± 2000 Бк/кг дейінгі мәнді құрады. ^3H құрамы екі формада: бос суда (Ұзынбұлақ бұл. түптік шөгінділердің үлгілері үшін) және тығыз байланысқан формада екені анықталды. Бос судағы ^3H мөлшері 6400 ± 640 Бк/кг бастап 21000 ± 2100 Бк/кг дейін, ^3H тығыз байланысқан түрінде 8 ± 1 Бк/кг бастап 5300 ± 550 Бк/кг дейін болды.

Түйін сөздер: *ССП, бұлақ, техногендік радионуклидтер, радионуклидтердің ластануы, тігінен таралуы, түптік шөгінділер.*

**INVESTIGATION OF VERTICAL DISTRIBUTION OF ANTHROPOGENIC RADIONUCLIDES
IN SEDIMENTS OF WATERCOURSES OF THE “DEGELEN” SITE**

R. G. Yermakova*, A. K. Aidarkhanova, Zh. Ye. Tleukanova, A. S. Mamyrbayeva

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

** E-mail for contacts: lavrikova@nnc.kz*

The article presents research data on the vertical distribution of radionuclides in bottom sediments of water streams at the former Degelen test location of the Semipalatinsk Test Site. As part of research, bottom sediments were sampled in the form of undisturbed cores. Based upon findings on the content of radionuclides in bottom sediment samples, histograms were plotted to describe the vertical distribution of radionuclides. The distribution of man-made radionuclides such as ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^3H is addressed. The content of ^{241}Am is <DL in all collected samples. That of ^{137}Cs and ^{90}Sr varied from 3 ± 1 to 180 ± 20 Bq/kg and 10 ± 1 to $13,000\pm 2,000$ Bq/kg, respectively. The content of ^3H was determined in two forms: in the free water (for bottom sediment samples from the Uzynbulak cr.) and in the tightly bound form. The content of ^3H in the free water was $6,400\pm 640$ Bq/kg to $21,000\pm 2,100$ Bq/kg, in the tightly bound form – 8 ± 1 Bq/kg to $5,300\pm 550$ Bq/kg.

Keywords: *STS, creek, man-made radionuclides, radionuclide contamination, vertical distribution, bottom sediments.*

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-138-146>

УДК 550.34

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК

О. В. Рябенко*, В. И. Дубровин

Филиал «Институт геофизических исследований» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

* E-mail для контактов: Oksy300189@mail.ru

В работе рассматриваются различные аспекты регистрации сильных землетрясений с магнитудой $M_w \geq 7$ в Турции и Китае (2023 и 2024 гг.) сейсмическими группами сети Национального ядерного центра с точки зрения эффективности их участия в сейсмомониторинге. Определены невязки значений азимутов и времен пробега по сейсмическим группам. Даны рекомендации для аналитиков по использованию различных станций при обработке данных из районов исследуемых землетрясений. Сделан анализ записей инфразвуковых станций с целью обнаружения сигналов от этих сильных землетрясений. Найдены сигналы по станции IS31 (Актюбинск) от турецких землетрясений и по станции Маканчи от китайского землетрясения.

Ключевые слова: сильные землетрясения, сейсмическая группа, регистрация, главный толчок, афтершок, азимут, время пробега, инфразвуковой сигнал.

ВВЕДЕНИЕ

В работе рассмотрены записи сильных землетрясений в Турции и Китае, произошедших в 2023 и 2024 гг., по станциям сети НЯЦ РК. Магнитуда всех исследуемых землетрясений превышала 7.

6 февраля 2023 года на территории юга-востока Турции с интервалом в девять часов произошли два мощных землетрясения. Эпицентр первого, с магнитудой $M_w = 7,8 (\pm 0,1)$, находился в районе Газиантепе (Турция), эпицентр второго, с магнитудой $M_w = 7,5 (\pm 0,1)$, – в районе Кахраманмараше (Тур-

ция). В результате катастрофы в Турции погибло свыше 50 090 человек, в Сирии – 8476 человек, еще десятки тысяч людей пострадали. После землетрясений суммарно зарегистрировано более 50000 повторных толчков, самый сильный афтершок имел магнитуду 6,7. По меньшей мере 9224 здания были частично или полностью разрушены. Землетрясения произошли в густонаселенных районах.

На рисунках 1 и 2 представлены карты сейсмической интенсивности от землетрясений 6 февраля 2023 года в Турции [1].

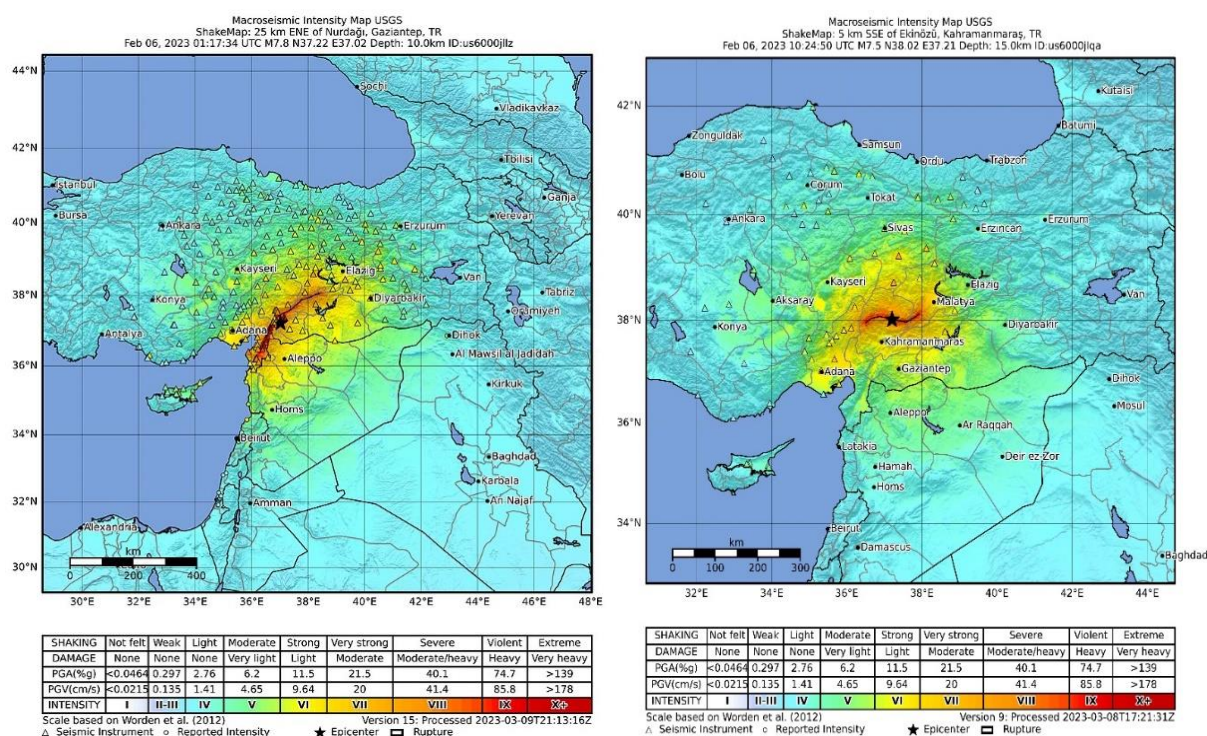


Рисунок 1. Карты изосейст землетрясений 6 февраля 2023 года в Турции [1]

22 января 2024 года на территории Китая произошло сильное землетрясение. Эпицентр землетрясения находился в уезде Уши в округе Аксу в горной местности на северо-западе Синьцзян-Уйгурского автономного района КНР неподалёку от границы с Кыргызстаном. Магнитуда $M_w = 7,1 (\pm 0,1)$. Но поскольку землетрясение произошло в малонаселенной местности, число пострадавших оказалось минимальным для землетрясения с такой магнитудой. По данным агентства Синьхуа [2], вблизи эпицентра расположены пять деревень. Обрушилось несколько жилых домов и загонов для скота, некоторые пастухи получили легкие ранения. Отмечены остановки на железной дороге движения 27 поездов. В некоторых районах после землетрясения произошли перебои с электроснабжением. Сообщается о 47 разрушенных домах и о 78 поврежденных [3, 4].

Толчки от землетрясения ощущались в Кыргызстане, Казахстане и некоторых регионах Узбекистана. Землетрясение произошло в 260 км к юго-востоку от г. Алматы. В г. Алматы оно ощущалось с интенсивностью 4–5 баллов и вызвало панику среди населения.

На рисунке 3 представлена карта изосейст землетрясения, произошедшего 22 января в Китае [4] по данным китайских сейсмологов.

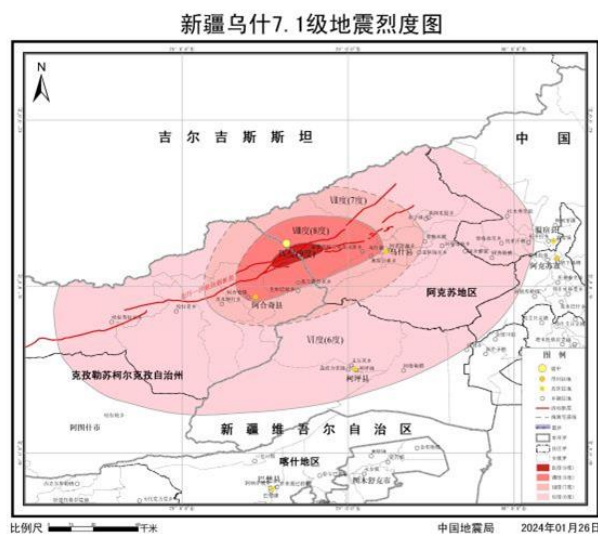


Рисунок 3. Карта изосейст землетрясения, произошедшего 22 января 2024 года в Китае

При одинаковой интенсивности Турецких и Китайского землетрясений в эпицентре они имеют огромную разницу в разрушениях и количестве жертв.

1. УЧАСТИЕ СЕЙСМИЧЕСКИХ СТАНЦИЙ НЯЦ РК В РЕГИСТРАЦИИ И ОБРАБОТКЕ ГЛАВНЫХ ТОЛЧКОВ И ИХ АФТЕРШОКОВ В МЕЖДУНАРОДНЫХ ЦЕНТРАХ ДАННЫХ

При поддержке международных организаций в Казахстане создана современная система мониторинга ядерных взрывов и землетрясений, являющаяся частью международных систем мониторинга. Сеть

ИГИ НЯЦ РК [5] начала свою работу с середины 1994 г., главной особенностью сети является то, что большинство станций являются сейсмическими группами различной конфигурации, расположенными по периметру Казахстана, что обеспечивает эффективную регистрацию сейсмических событий как внутри страны, так и за ее пределами.

В настоящее время сеть наблюдений ИГИ НЯЦ РК включает в себя 5 сейсмических групп, 8 трехкомпонентных сейсмических станций и 3 инфразвуковых группы (рисунок 4). Основные задачи сети сейсмических наблюдений ИГИ НЯЦ РК заключаются в участии в глобальном мониторинге ядерных испытаний и землетрясений в поддержку Договора ДВЗЯИ и в региональном мониторинге событий Центральной Азии. На рисунке 4 показана карта расположения станций сети НЯЦ РК и эпицентры выбранных землетрясений.

Данные станций НЯЦ РК в разных режимах оперативности и в разной форме поступают в различные центры данных, где они наряду с данными станций других сетей мира используются для локализации источника, для определения его магнитуды и энергии. Самые оперативные решения на основе автоматической обработки выдает Европейский средиземноморский центр данных (EMSC) [6]. В этот центр из KNDC [7] (центр данных в г. Алматы) уходят автоматические бюллетени обработки. В Международный центр данных IDC [8] Организации Договора о всеобъемлющем запрещении ядерных испытаний поступают непрерывные волновые формы со станций, входящих в систему мониторинга IMS. В Центр данных Американской геологической службы USGS [9] поступают данные станций НЯЦ РК, входящих в системы IRIS и ряда других. Анализ показал, что для получения оперативных решений во всех этих международных центрах использовались данные станций сети НЯЦ РК.

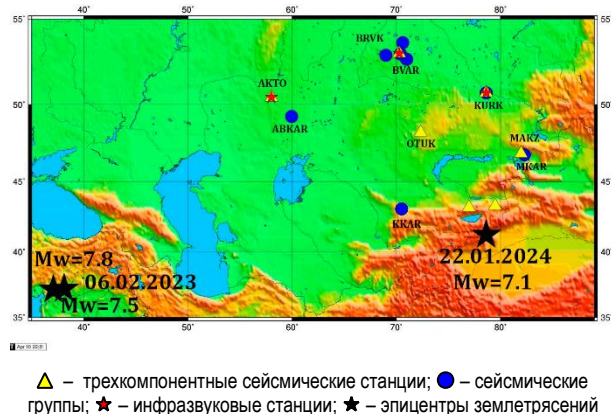


Рисунок 4. Схема расположения сейсмических и инфразвуковых станций НЯЦ РК и эпицентров исследуемых землетрясений

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК

Таблица 1. Событие 6 февраля 2023 г. в 01:17 (GMT) по данным разных центров мира и участие станций НЯЦ РК в их решении

Источник	Время	Широта	Долгота	Глубина	Магнитуда	Станции
EMSC	01:17:36,1	37,17	37,08	20	Mw 7,8	ABKAR, BRVK, K KAR, KURK, MAKZ, MKAR, PDGK
USGS	01:17:34,332	37,2302	37,019	10	Mw 7,8	ABKAR, K KAR, KURK, MAKZ, MKAR, PDGK
IDC (REB)	01:17:33,410	37,2687	37,0891	0	Ms 7,9	AKTO, BVAR, KURK, MKAR, IS31KZ

Таблица 2. Событие 6 февраля 2023 г. в 10:24 (GMT) по данным разных центров мира и участие станций НЯЦ РК в их решении

Источник	Время	Широта	Долгота	Глубина	Магнитуда	Станции
EMSC	10:24:49,6	38,11	37,24	10	Mw 7,5	ABKAR, K KAR, KURK, MAKZ, MKAR, PDGK
USGS	10:24:49,640	38,008	37,211	13	Mw 7,8	ABKAR, K KAR, KURK, MAKZ, MKAR
IDC (REB)	10:24:47,490	38,1152	37,2285	0	Ms 7,8	AKTO, BVAR, KURK, MKAR, IS31KZ

Таблица 3. Событие 22 января 2024 года в 18:09 (GMT) по данным разных центров мира и участие станций НЯЦ РК в их решении

Источник	Время	Широта, N	Долгота, E	Глубина	Магнитуда	Станции
EMSC	18:09:05	41,311°	78,655°	20	Mw 7,0	ABKAR, K KAR, KURK, MAKZ, MKAR, PDGK
USGS	18:09:04	41,256°	78,654°	13	Mw 7,0	ABKAR, K KAR, KURK, MAKZ, MKAR, PDGK
IDC (REB)	18:09:02	41,2439°	78,6769°	0	Ms 7,2	AKTO, BVAR, KURK, MKAR, IS31KZ

Все станции хорошо зарегистрировали исследуемые три события, автоматические решения были переданы в EMSC, а волновые формы поступили в два других центра. В таблицах 1, 2 и 3 показано, какие станции Казахстана участвовали в получении решений в международных центрах.

Отметим, что для турецких землетрясений расхождения в положении эпицентра по данным разных центров доходят до 10 км даже при большом количестве станций регистрации и хорошем окружении источника. Для китайского землетрясения расхождения между решениями меньше 5 км.

Была проанализирована магнитудная чувствительность казахстанских станций IMS по регистрации афтершоков и пороговая чувствительность станций. В систему IMS входят 4 сейсмические станции: Маканчи – первичная станция, Боровое, Курчатова и Актюбинск – вспомогательные станции. Причем три из них – это сейсмические группы, а Актюбинск – трехкомпонентная станция. Эпицентральное расстояние до первого турецкого толчка составляет от 2226 км по станции Актюбинск до 3841 км по станции Маканчи, а до китайского землетрясения – от 660 км по станции Маканчи до 1709 км по станции Актюбинск. Анализировался период времени в 2 месяца после землетрясений. В таблицах 4 и 5 представлено общее количество зарегистрированных из этих очагов афтершоков.

Видно, что по самой дальней от эпицентра турецкого землетрясения станции Маканчи зарегистрировано наибольшее количество событий. Причем эта зависимость характерна для событий, начиная с магнитуды 3,0. Для китайского землетрясения самое большое количество афтершоков зарегистрировано также по станции Маканчи, она записала события начиная с магнитуды 2,8. Эта станция отличается высо-

кой эффективностью, занимает среди станций IMS мира уверенное третье место по количеству обнаруживаемых и включаемых в бюллетень REB событиям.

Таблица 4. Количество зарегистрированных афтершоков в Турции

Станция	Количество событий	Эпицентральное расстояние, км
AKTO	375	2226
BVAR	373	3116
KURK	453	3602
MKAR	675	3841

Таблица 5. Количество зарегистрированных афтершоков в Китае

Станция	Количество событий	Эпицентральное расстояние, км
AKTO	149	1709
BVAR	335	1432
KURK	408	1035
MKAR	438	660

Анализ всех данных по афтершокам показал, что по станциям Казахстана из района турецких землетрясений мы можем уверенно фиксировать события с магнитудой более 3,5, а из района китайского события – с магнитудой более 3,2.

Данными по размерам области проявления афтершоков рассматриваемых землетрясений подтверждена ранее полученная в нашем Центре зависимость размеров области проявления афтершоков, ассоциируемой с размерами очага, от магнитуды. Зависимость была получена для землетрясений на территориях Казахстана и Кыргызстана [10] (рисунок 5).

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК

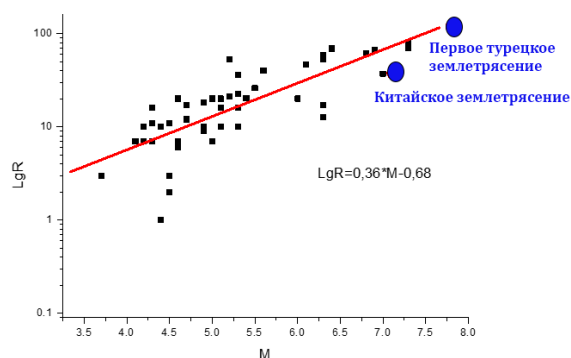


Рисунок 5. График зависимости размеров области афтершоков R, км от магнитуды Mw [10] со значениями областей для китайского и турецкого землетрясений

Можно сделать вывод, что полученные формулы можно применять не только для землетрясений территории Казахстана и Кыргызстана, но и для более удаленных событий.

2. АНАЛИЗ СЕЙСМИЧЕСКИХ ЗАПИСЕЙ И ОПРЕДЕЛЕННЫЕ ПО НИМ ПАРАМЕТРЫ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ

В Центре данных ИГИ НЯЦ РК были собраны, проанализированы все записи станций НЯЦ РК, по ним определены кинематические и динамические характеристики сейсмических волн и получены параметры землетрясений. На рисунках 6, 7 и 8 приведены записи турецкого и китайского землетрясений по пяти сейсмическим группам.

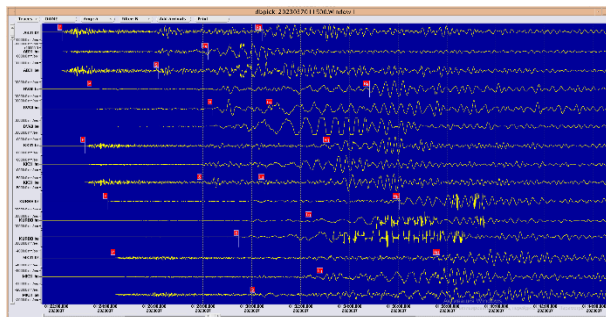


Рисунок 6. Записи первого турецкого землетрясения по пяти сейсмическим группам (показаны только записи на трехкомпонентных станциях групп)

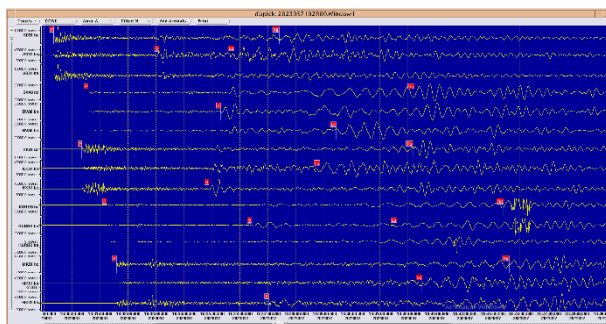


Рисунок 7. Записи второго турецкого землетрясения по пяти сейсмическим группам (показаны только записи на трехкомпонентных станциях групп)

Заметим, что для турецких землетрясений даже на столь больших расстояниях 2–5 тысяч км записи в области поверхностных волн были «зашкалены».

Анализ записей турецкого землетрясения показал более сложную волновую картину у первого очага, что может говорить о сложном процессе в его очаге.

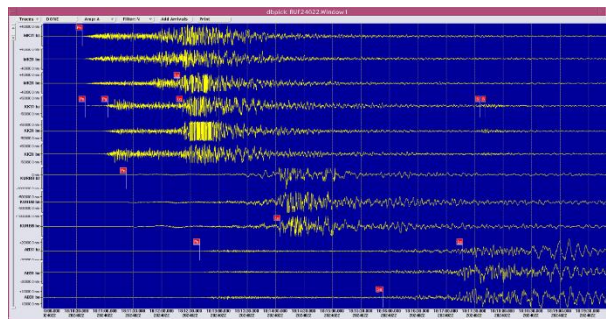


Рисунок 8. Китайское событие по пяти сейсмическим группам (показаны только записи на трехкомпонентных станциях групп)

Для китайского землетрясения также «зашкалены» записи на станциях Каратау и Маканчи. При анализе записи китайского землетрясения видны четкие времена вступления по всем станциям.

На рисунке 9 и 10 отдельно представлены записи по станции Маканчи МК31.

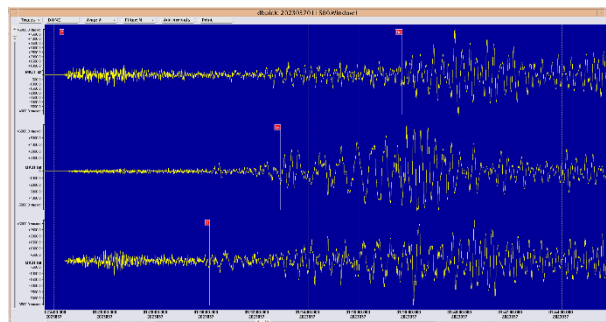


Рисунок 9. Записи первого турецкого землетрясения по станции МК31

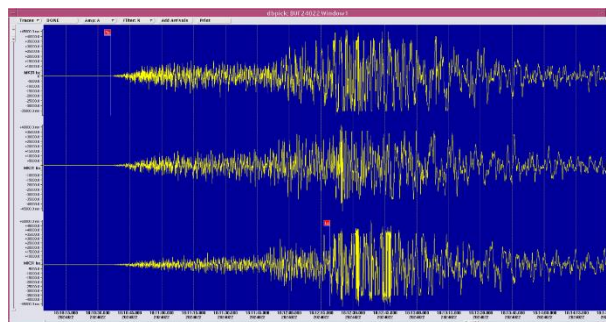


Рисунок 10. Китайское событие по станции МК31

По записям всех станций были определены времена вступления всех сейсмических фаз, амплитуды, периоды, что позволило рассчитать значения магнитуд по объемным волнам mb, а также изучить невязки по различным параметрам. В таблице 8 представ-

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК

лены магнитудные характеристики трех землетрясений по станциям НЯЦ РК. По магнитуде m_b три землетрясения имели почти равную величину.

Важным параметром для проведения локализации события по сейсмическим группам является баказимут – азимут со станции на эпицентр, определяемый на основе F-k (частотно-волново-численного анализа), по сейсмическим группам. Нашей задачей было нахождение невязки в баказимутах – различия между истинным и расчетным по F-k значениями баказимуты для каждой сейсмической группы. Допустимая невязка в баказимутах должна быть не более 10 градусов. Из таблицы 9 видно, что станции Каратау и Боровое имеют ошибку в значениях азимута больше допустимой. Рассматривая баказимуты от станции на эпицентр для китайского землетрясения, мы можем сказать, что поправку по азимутам вносить не нужно, так как они определяются достаточно хорошо (таблица 10).

Таблица 8. Магнитуды трех событий по станциям НЯЦ РК

Станция	Энергетические характеристики (m_b)		
	Турция 1 событие	Турция 2 событие	Китайское событие
AB31	6,63	6,4	6,68
AKTO	6,32	6,57	6,64
KK31	6,71	6,58	7,52
PDGK	6,74	6,96	–
MAKZ	6,27	6,31	6,42
KURK	6,45	6,49	6,39
СРЕДНЕЕ	6,45	6,46	6,53 (без учета Каратау)

Таблица 9. Расчетные и истинные значения баказимуты по первому турецкому землетрясению

Станция	Расчетный азимут	Истинный азимут	δAz
ABKAR	242	242	0
BVAR	264	249	15
KKAR	304	268	36
KURBB	267	261	6
MKAR	269	270	1

Таблица 10. Расчетные и истинные значения баказимуты по китайскому землетрясению

Станция	Расчетный азимут	Истинный азимут	δAz
ABKAR	109	114	5
KKAR	100	104	4
KURBB	181	179	3
MKAR	205	206	1

На рисунках 11 и 12 показаны примеры нахождения баказимута по станции Акбулак для турецкого и китайского землетрясений.

Поскольку для локализации событий в практике Центра данных используется годограф IASPEI 91[8], важно было оценить невязки времен пробега относи-

тельно этого годографа по разным типам волн. За истинный гипоцентр землетрясений принимались решения, полученные в IDC для турецких землетрясений, а для землетрясения в Китае – $\varphi = 41^{\circ}15'36.00''N$ $\lambda = 78^{\circ}37'48.00''E$. Были определены все времена пробега для разных типов волн по измеренным временам вступления на станциях. Следующим шагом было нахождение времен пробега по годографу IASPEI 91 тех же типов волн для конкретных расстояний и сравнение двух значений времен пробега. Сравнение проводилось для каждого события по Р и S волнам.

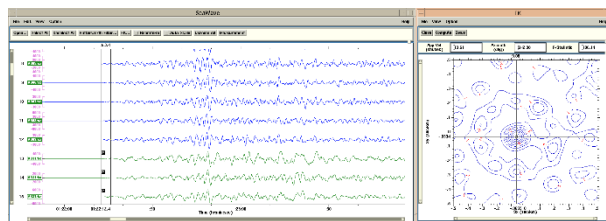


Рисунок 11. Нахождение баказимута по станции ABKAR для первого турецкого землетрясения

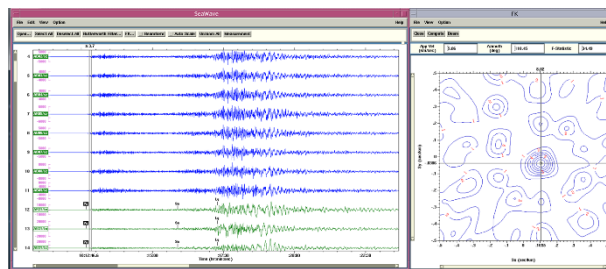


Рисунок 12. Нахождение баказимута по станции ABKAR для китайского землетрясения

Отмечается, что для турецких землетрясений (таблица 12) по Р-волнам получены достаточно небольшие невязки, то есть годограф можно использовать в практике обработки. Но для S-волн картина гораздо хуже. Это связано с проблемами при выделении вступлений этой волны на фоне коды Р-волн. По возможности при локализации лучше использовать только первые вступления Р-волн и баказимуты. Для китайского землетрясения получены достаточно небольшие невязки по всем типам волн (таблица 13). Это говорит о том, что можно проводить локализацию событий, используя годограф IASPEI 91 для обработки событий из этого района. Лучше при локализации использовать волны P_n и L_g .

3. ИНФРАЗВУКОВЫЕ СТАНЦИИ В РЕГИСТРАЦИИ ТУРЕЦКИХ И КИТАЙСКОГО ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ

Центр данных ИГИ НЯЦ РК ведет непрерывный инфразвуковой мониторинг. Производится сбор и обработка данных с трех казахстанских инфразвуковых станций – Актюбинск IS31, Курчатов (KURIS), Маканчи (MKAIR), а также Российской инфразвуковой группы Залесово (I46RU) (MCM), расположенной вблизи границы с Казахстаном на юге Западной Сибири.

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК

Таблица 12. Сравнение значений времен пробега по первому турецкому землетрясению

Станция	P			S		
	T, с по годографу	T, с по времени прихода	Невязка δt , с	T, с по годографу	T, с по времени прихода	Невязка δt , с
AB31	00:04:31	00:04:38	00:00:07	00:08:16	00:08:35	00:00:19
AKTO	00:04:31	00:04:31	00:00:00	00:08:16	00:08:22	00:00:06
KK31	00:05:32	00:05:34	00:00:02	00:10:02	00:10:21	00:00:19
OTUK	00:05:50	00:05:50	00:00:00	00:10:34	00:10:57	00:00:23
BVA0	00:05:50	00:05:50	00:00:00	00:10:34	00:10:47	00:00:13
KNDC	00:06:07	00:06:17	00:00:10	00:11:05	00:11:51	00:00:46
PDGK	00:06:25	00:06:32	00:00:07	00:11:37	00:11:58	00:00:21
MAKZ	00:00:42	00:06:46	00:00:04	00:12:08	00:12:25	00:00:17
MK31	00:06:42	00:06:48	00:00:06	00:12:08	00:12:32	00:00:24
KURBB	00:06:25	00:06:29	00:00:04	00:11:37	00:11:52	00:00:15
KURK	00:06:25	00:06:30	00:00:05	00:11:37	00:11:54	00:00:17

Таблица 13. Сравнение значений времен пробега для китайского землетрясения

Станция	Pn			Sn			Lg		
	T, с по годографу	T, с по времени прихода	Невязка δt , с	T, с по годографу	T, с по времени прихода	Невязка δt , с	T, с по годографу	T, с по времени прихода	Невязка δt , с
AB31	00:03:35	00:03:35	00:00:00	00:06:27	00:06:49	00:00:22	00:08:09	00:08:13	00:00:04
AKTO	00:03:57	00:03:57	00:00:00	00:07:07	00:07:32	00:00:25			00:00:00
KK31	00:01:32	00:01:35	00:00:03	–	–	–	00:03:21	00:03:17	-00:00:04
OTUK	00:01:59	00:02:02	00:00:03	–	–	–	00:04:24	00:04:25	00:00:01
KNDC	00:00:37	00:00:42	00:00:05	00:01:06	00:01:13	00:00:07	–	–	00:00:00
PDGK	00:00:35	00:00:39	00:00:04	00:01:02	00:01:11	00:00:09	–	–	00:00:00
MAKZ	00:01:28	00:01:32	00:00:04	00:02:38	00:02:47	00:00:09	00:03:12	00:03:15	00:00:03
MK31	00:01:29	00:01:32	00:00:03	–	–	–	00:03:15	00:03:15	00:00:00
KURBB	00:02:13	00:02:18	00:00:05	–	–	–	00:04:58	00:05:00	00:00:02
KURK	00:02:15	00:02:18	00:00:03	–	–	–	00:05:01	00:04:59	-00:00:02

Детектирование сигналов в записях станций производится с использованием детектора РМСС. РМСС – метод прогрессивной мультиканальной корреляции, разработанный во французском национальном центре данных и предоставленный казахстанскому центру данных для использования при работе с инфразвуковыми и сейсмическими данными [9]. Главное достоинство метода заключается в его способности обнаруживать посредством поиска взаимной корреляции между записями разных элементов инфразвуковой или сейсмической групп сигналы, определять параметры этих сигналов. Все данные, регистрируемые станцией изо дня в день, обрабатываются и заносятся в автоматический бюллетень детектирований. Сформированный в результате расчетов бюллетень представляет собой набор строк, расположенных в хронологическом порядке, каждая из которых включает информацию о параметрах обнаруженного сигнала (время, азимут, кажущаяся скорость, частота, амплитуда). Анализ накопленного материала позволяет составить представление об источниках инфразвука, сигналы которых регистрирует станция.

Инфразвуковой сигнал от землетрясения, произошедшего на территории Китая 22 января 2024 года в 18:09, был зарегистрирован казахстанской инфразву-

ковой группой Маканчи (МКАИР), а также Российской инфразвуковой группой Залесово (I46RU).

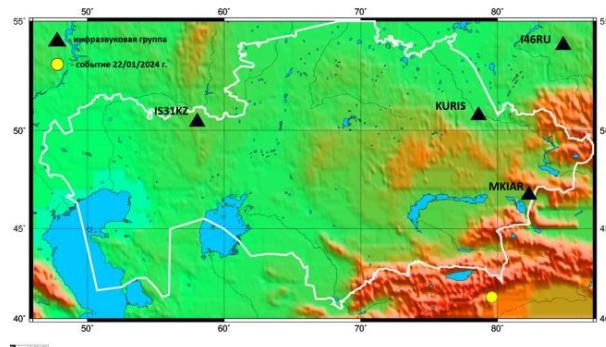


Рисунок 13. Инфразвуковые группы Казахстанской сети мониторинга, а также Российская инфразвуковая группа I46RU

Истинный азимут от инфразвуковой группы MKIAR примерно 207 градусов, расстояние от эпицентра до станции около 683 километра. На рисунке 14 представлены результаты регистрации события на территории Китая 22 января 2024 года. На принадлежность этого сигнала указанному землетрясению указывает кажущаяся скорость и азимут на эпицентр.

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДВУХ СИЛЬНЫХ ЗЕМЛЕТРЯСЕНИЙ В КИТАЕ И ТУРЦИИ ПО ДАННЫМ СЕТИ НЯЦ РК

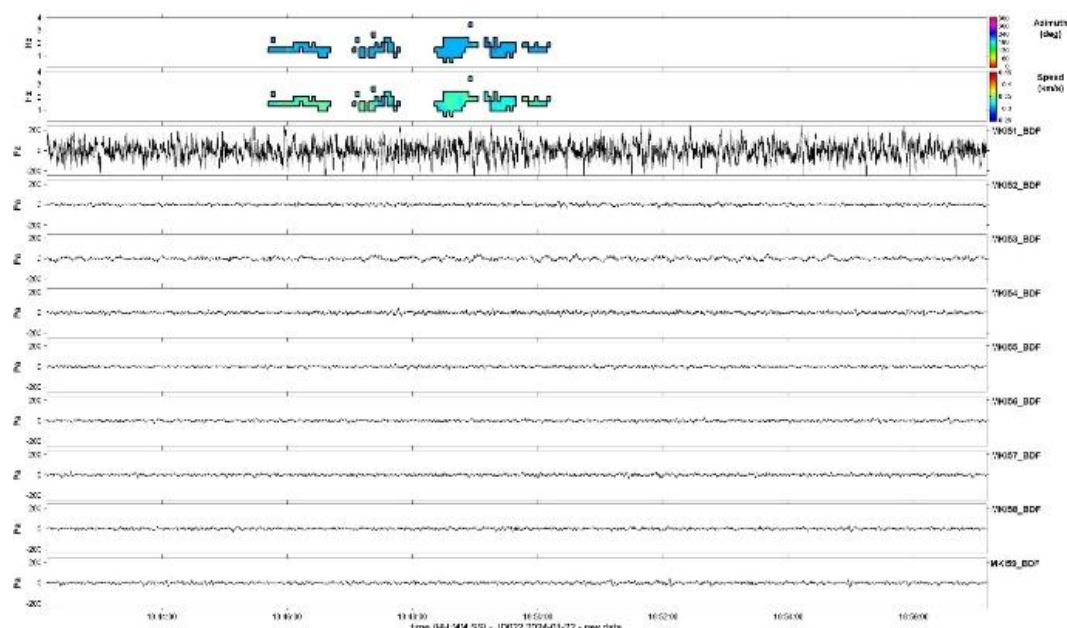


Рисунок 14. Результаты регистрации Китайского землетрясения 22 января 2024 года инфразвуковой станцией MKIAR (девять нижних трасс соответствуют элементам группы).
Использован метод РМСС

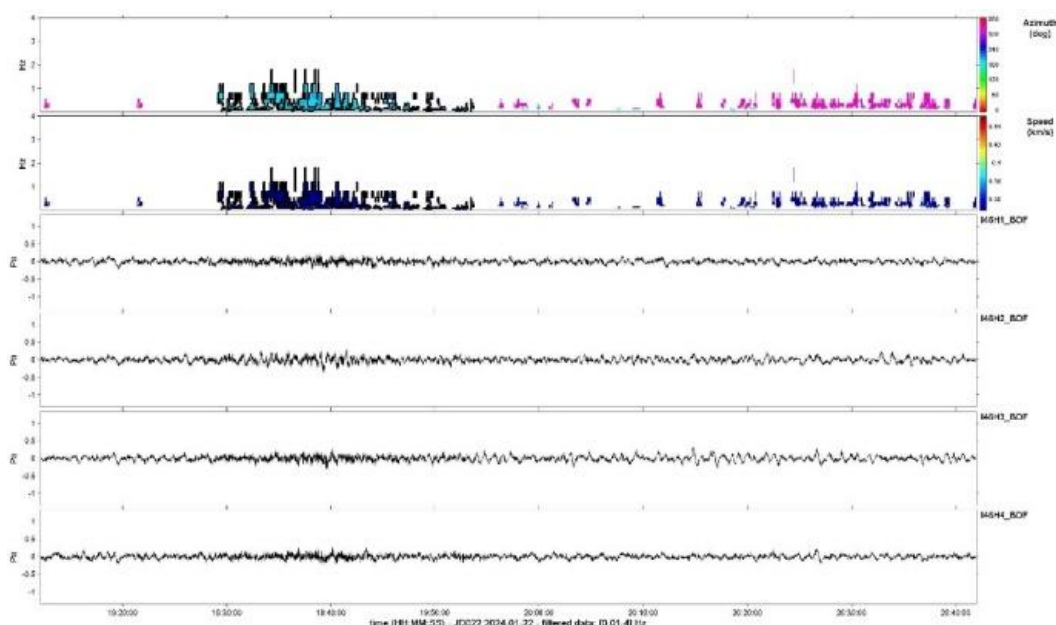


Рисунок 15. Результаты регистрации китайского землетрясения 22 января 2024 года российской инфразвуковой станцией Залесово (I46RU) (четыре нижние трассы соответствуют элементам группы). Использован метод РМСС

Инфразвуковая станция I46RU Залесово входит в состав МСМ, состоит из 4 элементов. Данные этой инфразвуковой группы поступают в Центр данных в г. Алматы режиме реального времени. Истинный азимут на эпицентр равен 201 градус, расстояние до эпицентра землетрясения 1440 километра. На рисунке 15 представлены результаты регистрации события этой станцией.

Два мощных землетрясения в Турции были зарегистрированы станциями МСМ и сетью ИГИ НЯЦ

РК. Анализ и сравнение инфразвуковых волн были проведены на примере инфразвуковой группы IS31 Актюбинск. Расстояние от группы IS31 Актюбинск до эпицентра главного толчка Китайского землетрясения составило около 1900 км, расчетный азимут примерно 114°. При изучении волновой формы инфразвуковой группы IS31 Актюбинск по данным бюллетеня IDC REB было обнаружено на инфразвуковой записи только вступление, соответствующее времени начала фазы сейсмической S- волны, которая пришла

на станцию в 18 часов 16 минут 34 секунды. О природе записанных волн можно судить по полученным значениям кажущейся скорости. Они равны значениям, полученным для соответствующих цугов сейсмических волн. Механизм их генерации описан в [13]. Вертикальное смещение сейсмических волн генерирует на месте установки приборов обменные волны «поверхность – атмосфера». Местное преобразование сейсмических волн в волны звукового давления, наблюдаемое посредством микробарометров на региональных и телесеизмических расстояниях, описано в [14–16]. В то же время, при изучении волновой формы инфразвуковой группы IS31 Актюбинск с помощью детектора РМСС семейства детектирования от очагов не были обнаружены в расчетном диапазоне азимутов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Все сейсмические станции НЯЦ РК зарегистрировали рассмотренные сильные землетрясения в двух регионах мира – Турции и Китае. Их данные использованы во всех международных центрах для оперативной локализации очагов.

2. Наиболее эффективной станцией в регистрации афтершоков всех изученных землетрясений оказалась первичная станция МСМ Маканчи. Ею обнаружено наибольшее количество афтершоков с магнитудой от 3,2–3,5 и более.

3. По всем станциям для всех сейсмических фаз определены времена вступления, амплитуды и периоды. Рассчитаны значения магнитуды m_b .

4. Турецкие и китайские землетрясения использованы нами для повышения эффективности мониторинга – для поиска невязок времен пробега продольных и поперечных волн и баказимутов по станциям НЯЦ РК. При турецких землетрясениях выявлены недопустимые отклонения в баказимутах станции Каратау, что требует дополнительного анализа. Для китайского землетрясения нет значительных невязок в значениях баказимутов и временах пробега относительно годографа IASPEI 91. Рекомендовано при локализации событий из района Южного Тянь-Шаня использовать времена вступлений волн P_n и L_g .

5. При китайском землетрясении обнаружены с помощью программы РМСС в расчетном диапазоне азимутов на источник сигналы по станциям Маканчи и Залесово. Эти сигналы сгенерированы в очаговой области и распространены на расстояния вплоть до почти 1500 км. При турецких землетрясениях инфразвук из очаговой области не обнаружено, имеется только инфразвуковой сигнал, образованный на месте установки микробарометра на станции IS31 Актюбинск на расстоянии почти 2000 км от очагов при вступлении сильных колебаний в фазе сейсмической S-волны.

Данные исследования финансировались Министерством энергетики Республики Казахстан в рамках научно-технической программы BR24792713 «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан».

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. [https://ru.wikipedia.org/wiki/Землетрясение в Турции и Сирии](https://ru.wikipedia.org/wiki/Землетрясение_в_Турции_и_Сирии) (2023)
2. [https://so.news.cn/Землетрясение в Китае/22/0](https://so.news.cn/Землетрясение_в_Китае/22/0)
3. <https://kz.kursiv.media/2024-01-23/dmnv-zemletryasenie-v-kitae/>
4. <http://www.gangyiku.com/xuexi/330432.html>
5. Михайлова Н.Н. Сейсмические данные станций НЯЦ РК для решения проблем сейсмобезопасности Казахстана // Вестник НЯЦ РК. – 2008. – Выпуск 2. – С. 79–84. [Mikhailova N.N. Seismic Data of Kazakhstani Stations to Solve Seismic Safety Problems in Kazakhstan // NNC RK Bulletin. – 2008. Issue 2. – P. 79–84. (In Rus.)]
6. <https://www.emsc-csem.org/>
7. <https://kndc.kz/>
8. <https://www.ctbto.org/>
9. <https://www.usgs.gov/>
10. Аристова И.Л., Михайлова Н.Н. Афтершоковые последовательности сильных землетрясений Казахстана и сопредельных стран. // Вестник НЯЦ РК. – 2017. – Вып. 2. – С. 83–92. [Aristova I.L., Mikhailova N.N. Aftershock Sequences of Large Earthquakes on the Territory of Kazakhstan and Adjacent Countries // NNC RK Bulletin. – 2017. Issue 2. – P. 83–92. (In Rus.)]
11. Bormann, P. Magnitude of seismic events, in IASPEI / ed. P. Bormann // New Manual of Seismological Observatory Practice. – Potsdam: GeoForschungsZentrum. – 2002. – Vol. 1. – P. 16–50.
12. Cansi Y. An automatic seismic event processing for detection and location: The P.M.C.C. method // Geophys. Res. Lett. – 1995. – Vol. 22. – P. 1021–1024.
13. Le Pichon, J. Guilbert, M. Valle'e, J. X. Dessa, M. Ulziibat Infrasonic imaging of the Kunlun Mountains for the great 2001 China earthquake // Geophysical Research Letters. – 2003. – Vol. 30. – Issue 15. – P. 1814. <https://doi.org/10.1029/2003gl017581>
14. W.L. Donn, E.S. Posmentier Ground-coupled air waves from the great Alaskan earthquake // J. Geophys. Res.. – 1964. – Vol. 69. – P. 5357–5361.
15. R. K. Cook Infrasonic sound radiated during the Montana earthquake of 1959 August 18 // Geophys. J. R. – 1971. – Astr. Soc., – Vol. 26. – P. 191–198.
16. Y. Takanashi, Y. Koyama, T. Isei, In situ measured infrasound at Sapporo associated with an earthquake occurring offshore in southwest Hokkaido on July 12, 1993 // J. Acoust. Soc. Jpn. – 1994. – Vol. 15. – P. 409–411.

**ҚР ҰАО ЖЕЛІСІНІҢ ДЕРЕКТЕРІ БОЙЫНША ҚЫТАЙ МЕН ТҮРКИЯДАҒЫ ЕКІ ІРІ ЖЕР
СІЛКІНІСІНІҢ САЛЫСТЫРМАЛЫ СИПАТТАМАСЫ**

О. В. Рябенко*, В. И. Дубровин

ҚР ҰАО РМК «Геофизикалық зерттеулер институты» филиалы, Курчатов, Қазақстаны

** Байланыс үшін E-mail: Oksy300189@mail.ru*

Аннотация: жұмыста Ұлттық ядролық орталық желісінің сейсмикалық топтарының сейсмикалық мониторингке қатысу тиімділігі тұрғысынан $MW \geq 7$ магнитудасы бар қатты жер сілкіністерін Түркия мен Қытайда (2023 және 2024 ж.ж.) тіркеудің әр түрлі аспектілері қарастырылады. Азимут мәндерінің және сейсмикалық топтар бойынша жүгіру уақытының сәйкессіздігі анықталды. Зерттелетін жер сілкінісі аймақтарынан деректерді өңдеу кезінде әртүрлі станцияларды пайдалану бойынша талдаушыларға ұсыныстар берілді. Осы қатты жер сілкіністерінен сигналдарды анықтау мақсатында инфрадыбыстық станциялардың жазбаларына талдау жасалды. IS31 (Ақтөбе) станциясы бойынша түрік жер сілкіністерінен және Мақаншы станциясы бойынша қытай жер сілкінісінен сигналдар табылды.

Түйін сөздер: қатты жер сілкіністер, сейсмикалық топ, тіркеу, негізгі итеру, жер сілкінісі, азимут, жүгіру уақыты, инфрадыбыстық сигнал.

**COMPARATIVE CHARACTERISTICS OF TWO STRONG EARTHQUAKES IN CHINA AND TURKEY
BASED ON NNC RK NETWORK DATA**

O. V. Ryabenko*, V. I. Dubrovin

RSE NNC RK Branch “Institute of Geophysical Research”, Kurchatov, Kazakhstan

** E-mail for contacts: Oksy300189@mail.ru*

The paper deals with various aspects of registration of strong earthquakes with magnitude $Mw \geq 7$ in Turkey and China (2023 and 2024) by seismic arrays of the National Nuclear Center network in terms of view of the efficiency of their participation in seismic monitoring. The uncertainties of values of azimuths and travel times by seismic arrays. Recommendations are given for analysts on the use of different stations in processing data from the areas of the earthquakes under study. The records of infrasound stations were analyzed in order to detect signals from these strong earthquakes. Signals were found on station IS31 (Aktobe) from the Turkish earthquakes and station Makanchi from the Chinese earthquakes.

Keywords: strong earthquakes, seismic array, registration, main shock, aftershock, azimuth, travel time, infrasound signal.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-147-152>

УДК 538.958

СПЕКТРАЛЬНО-КИНЕТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ КАТОДОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ НИОБАТОВ ЛАНТАНОИДОВ (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi³⁺

**А. А. Кисабекова^{1,3*}, Н. А. Испулов², Р. Н. Асылбаев¹, А. Б. Базарбек³,
А. Д. Акылбекова³, А. Ж. Жумабеков², Е. К. Жетписбаев¹**

¹⁾ Павлодарский педагогический университет имени Э. Марғұлан, Павлодар, Казахстан

²⁾ Торайгыров университет, Павлодар, Казахстан

³⁾ Евразийский национальный университет имени Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

* E-mail для контактов: akisabekova5@mail.ru

Исследование посвящено изучению ниобатов лантаноидов легированных ионами висмута, представляющих интерес в качестве потенциальных люминофоров, используемых в различных областях деятельности человека, таких как медицина, промышленность, наука. В данной работе проведено экспериментальное исследование катодолюминесценции ниобатов (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi³⁺, а именно спектральных характеристик с временным разрешением, а также кинетики затухания люминесценции для основных спектральных полос. Представлена температурная зависимость значений времени затухания катодолюминесценции для образца YNbO₄:Bi³⁺, измеренная в температурном диапазоне 5–295 K с интервалом в 10 K. Исследование кинетики затухания люминесценции, сделанные в этом исследовании, показали, что, по крайней мере, три ярко выраженных компонента наблюдаются в кинетике затухания при низкой температуре. Из трех компонентов основной вклад в светосумму вносит медленный микросекундный компонент со временем затухания в диапазоне 2–9 мкс. Однако отдельный интерес представляет наносекундная кинетика собственного свечения образцов в ультрафиолетовой области спектра. Наличие нескольких быстрых компонент говорит о комплексной структуре этого свечения, связанной с суперпозицией полос свечения автолокализованных экситонов. Полученные данные представляют как научный, так и практический интерес при дальнейшей разработке функциональных материалов.

Ключевые слова: катодолюминесценция, ниобаты, висмут, спектроскопия, светодиоды.

ВВЕДЕНИЕ

Интерес к материалам, активированным висмутом, значительно вырос в последнее время в свете необходимости создания эффективных фосфоров для светодиодов как белого света (БСД/ WLED) [1–4] так и с настраиваемой люминесценцией во всем видимом диапазоне. Материалы ниобатов лантаноидов со структурой фергусонита могут рассматриваться как эффективные люминесцентные матрицы благодаря их превосходным химическим и механическим свойствам, а также оптическим характеристикам. Основная матрица материала может эффективно передавать свою энергию возбуждения основным активаторам, но их люминесценция будет значительно улучшена сенсбилизацией матрицы, когда активаторы входят в соединение матрицы [5, 6]. В зависимости от типа матрицы свечение ионов Bi³⁺ распространяется от ультрафиолетовой до зеленой области спектра, что делает висмут привлекательным для применения в люминофорах различного типа. Кроме того, ионы висмута обычно используется в качестве сенсбилизатора люминесценции лантаноидов в различных люминесцентных материалах [7, 8]. Также ниобаты лантаноидов активно исследуются для их применения в полевых эмиссионных дисплеях (ПЭД/FED) [9–12].

Целью настоящей работы является продолжение исследования спектрально-кинетических характеристик катодолюминесценции группы ниобатов

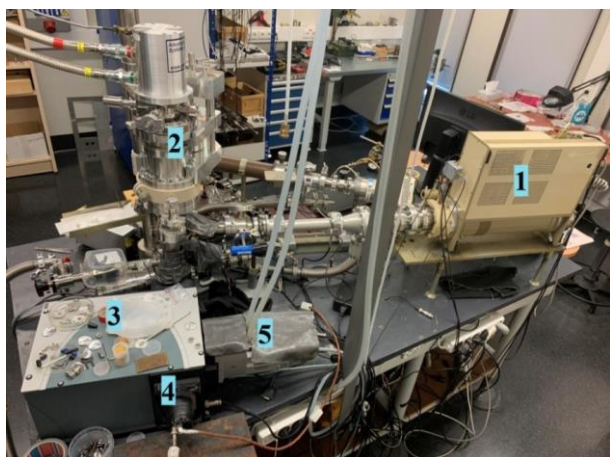
LuNbO₄, YNbO₄:Bi, GdNbO₄:Bi, LuNbO₄:Bi, начатого в работе [1].

МЕТОДЫ И МАТЕРИАЛЫ

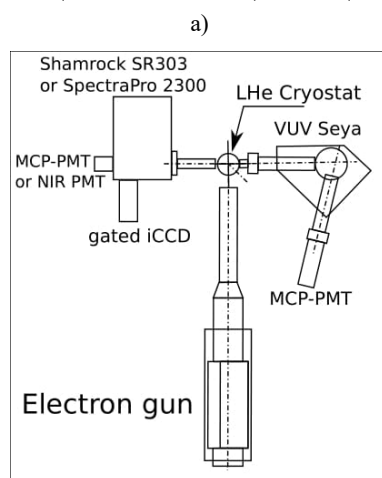
Микrokристаллические порошки (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi³⁺ с номинальным содержанием висмута 0,2% были синтезированы методом твердофазных реакций. Исходные высокочистые материалы Nb₂O₅ (Aldrich, >99,99%), Y₂O₃ (Aldrich, >99,99%) и Bi₂O₃ (Aldrich, >99,9%) смешивали в стехиометрических пропорциях. Для всех используемых в исследовании образцов рентгеноструктурный анализ (XRD) показал структуру чистого фергусонита моноклинного типа.

Иллюстративное фото и схемы установки импульсной катодолюминесценции представлены на рисунке 1. Электронная пушка РАДАН-303А генерирует импульсы электронов с максимальной энергией 120 кэВ, пиковой плотностью тока 10 А/см² и FWHM 180 пс.

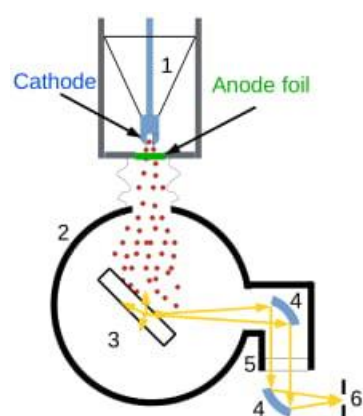
Для измерений образец помещался на кристаллодержатель гелиевого криостата замкнутого цикла (close-cycle cryostat) и после вакуумирования системы ($\approx 10^{-7}$ Торр) можно было проводить эксперименты в широком диапазоне температур 5–350 K.



1 – электронная пушка RADAN-303A; 2 – криостат; 3 – Shamrock SR303i; 4 – MCP-PMT (Hamamatsu R3809U-50); 5 – iCCD (iStar DH 720)



б)



1 – электронная пушка; 2 – вакуумный криостат; 3 – образец; 4 – внеосевые параболические зеркала (Al + MgF₂); 5 – окно из плавящего кварца; 6 – входная щель монохроматора [13]

в)

Рисунок 1. Экспериментальная установка импульсной катодолюминесценции: иллюстративное фото (а); схема установки для катодолюминесцентного эксперимента [12] (б); иллюстративная схема возбуждения и регистрации (в)

Установка оснащена двумя системами детектирования: ВУФ (UV) и УФ – видимый – ближний инфракрасный (UV–VIS–NIR). Для диапазона UV–VIS–NIR (0,77–5,7 эВ) свет выходит из вакуумной камеры через кварцевое окно. С воздушной стороны он фокусируется параболическими зеркалами на входную щель спектрографа Andor Shamrock SR303i. Боковой выходной порт спектрографа оснащен детектором Hamamatsu R3809U-50 MCP-PMT (FWHM 55 пс). Импульс тока с MCP-PMT регистрируется на цифровом осциллографе LeCroySDA760Zi-A (6 ГГц, 40 Гс/с). Программное обеспечение на базе LabView позволяет измерять как кинетику затухания люминесценции, так и спектры люминесценции с временным разрешением. Камера iCCD iStar DH 720 дополнительно устанавливается на порт прямого выхода спектрографа. Данная камера позволяет записывать спектры во временных окнах, задержанных относительно импульса возбуждения. В спектрографе установлены три решетки 300 штр/мм, с разными углами угла блеска, что позволяет охватить весь диапазон обнаружения детектирования от 5,7 до 0,77 эВ, используемый в данной работе.

Для обработки и визуализации всех полученных экспериментальных данных использовалось программное обеспечение ORIGIN 8.1 (OriginLab Corporation, <https://www.originlab.com/>), специализирующееся на численном анализе данных и научной графике. Полученные кривые затухания люминесценции для определения значений времени затухания (τ) обрабатывались в среде CoCalc (Collaborative Calculation and Data Science, <https://cocalc.com>) с использованием математических пакетов SageMath (система математических программ с открытым исходным кодом, <https://www.sagemath.org/>). Расчеты времени затухания (τ) проводились путем аппроксимации измеренных кривых затухания люминесценции одной или несколькими экспонентами.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

С использованием методики спектроскопии с временным разрешением и мощного электронного возбуждения, было показано, что спектральный состав полосы свечения в области 3,8–1,5 эВ меняется со временем после возбуждения [1]. Это свидетельствует о наличии совокупности процессов, ответственных за излучение в данной области.

Кинетика затухания катодолюминесценции (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi при температуре 5 К и в полосе с максимумом 420 нм представлена на рисунке 2. У ниобатов LuNbO₄:Bi и YNbO₄:Bi медленные компоненты одинаковы и длинные, у GdNbO₄:Bi медленная компонента значительно короче. На рисунке 3 приведены примеры кинетики затухания свечения в максимуме полосы ≈ 580 нм для всех исследуемых образцов.

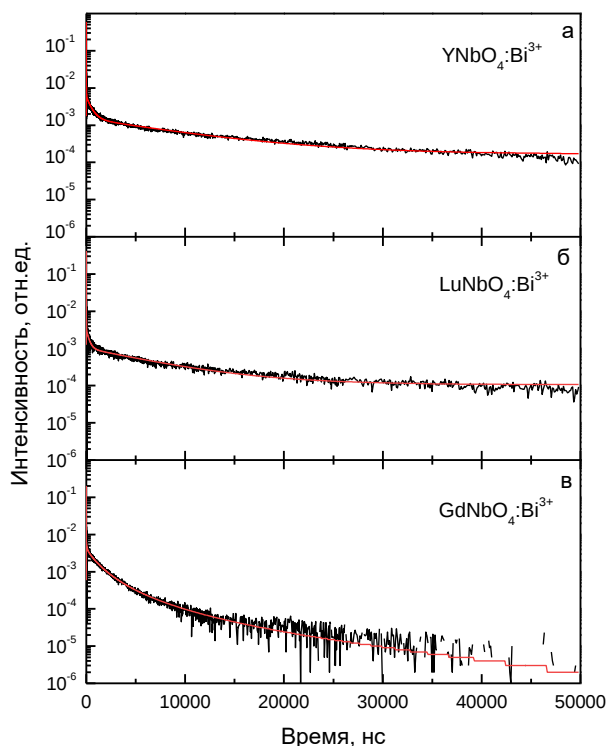


Рисунок 2. Кривые затухания катодолюминесценции образцов (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi, измеренные в спектральной полосе с максимумом ≈ 420 нм при $T = 5$ K

Кинетика затухания во всех исследованных кристаллах в двух основных полосах люминесценции является многокомпонентной. В люминофоре присутствует несколько независимых центров люминесценции, следовательно спад интенсивности люминесценции будет описываться суммой процессов излучения отдельных люминесцентных центров,

$$I(t) = I_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + I_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + I_3 \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right) + \dots$$

относительный вклад интенсивности каждой экспоненциальной компоненты:

$$LY_i = \frac{I_i \cdot \tau_i}{I_1 \cdot \tau_1 + \dots + I_n \cdot \tau_n}.$$

Полученные параметры аппроксимации кривых затухания катодолюминесценции для исследуемых образцов представлены в таблице 1.

Таблица 1. Параметры аппроксимации кривых затухания катодолюминесценции исследуемых образцов (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi в спектральных полосах с максимумами при 420 нм и 580 нм, измеренных при $T = 5$ K

Образец	I_1	τ_1	I_2	τ_2	I_3	τ_3	LY_1	LY_2	LY_3
420 нм									
GdNbO ₄ Bi	0,0027	535,6	0,0054	15,1	0,0020	2711	0,204	0,012	0,784
LuNbO ₄ Bi	0,0022	272,7	0,0098	9,6	0,0009	6988	0,075	0,012	0,810
YNbO ₄ Bi	0,0043	497,7	0,0109	17,8	0,0014	9344	0,143	0,013	0,844
580 нм									
GdNbO ₄ Bi	0,0011	494,6	0,0077	5,4	0,0012	2951	0,126	0,010	0,864
LuNbO ₄ Bi	0,0032	114,6	0,0199	5,2	0,0008	3075	0,120	0,034	0,828
YNbO ₄ Bi	0,0016	323,5	0,0084	10,2	0,0004	5721	0,179	0,029	0,792

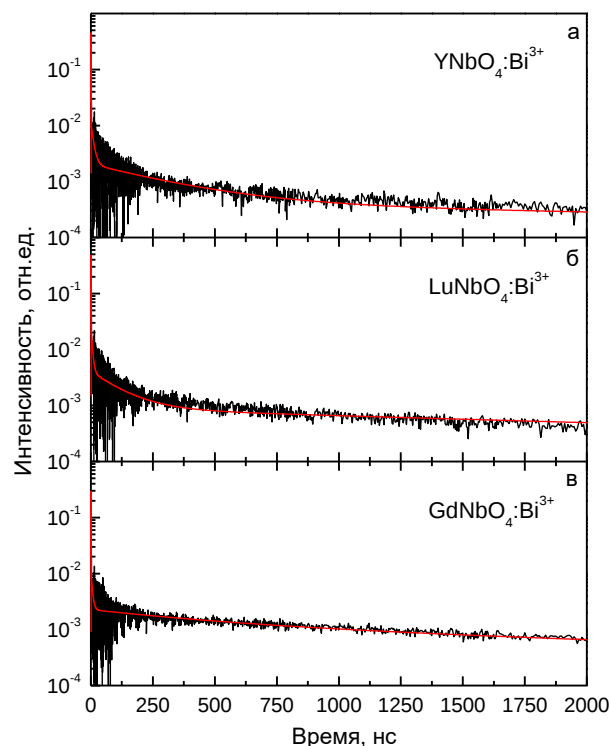


Рисунок 3. Кривые затухания катодолюминесценции образцов (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi, измеренные в спектральной полосе с максимумом ≈ 580 нм при $T = 5$ K

Кинетика затухания люминесценции состоит из трех компонент: нано- и микросекундной, вклад второй компоненты очень незначителен, составляет всего 1–3% для 580 нм и 1–1,2% для 420 нм (таблица 1). Самый большой вклад у третьей самой медленной компоненты 78–86%.

Полученные спектры катодолюминесценции с временным разрешением для образцов YNbO₄:Bi, GdNbO₄:Bi, LuNbO₄:Bi и нелегированного LuNbO₄, при комнатной температуре представлены на рисунке 4 и 5, соответственно. С целью продолжения данного исследования в наносекундной области запланированы измерения спектров с временным разрешением при низкой (5 K) температуре.

Температурные зависимости значений времени затухания катодолюминесценции были измерены в температурном диапазоне 5–295 K с интервалом 10 градусов.

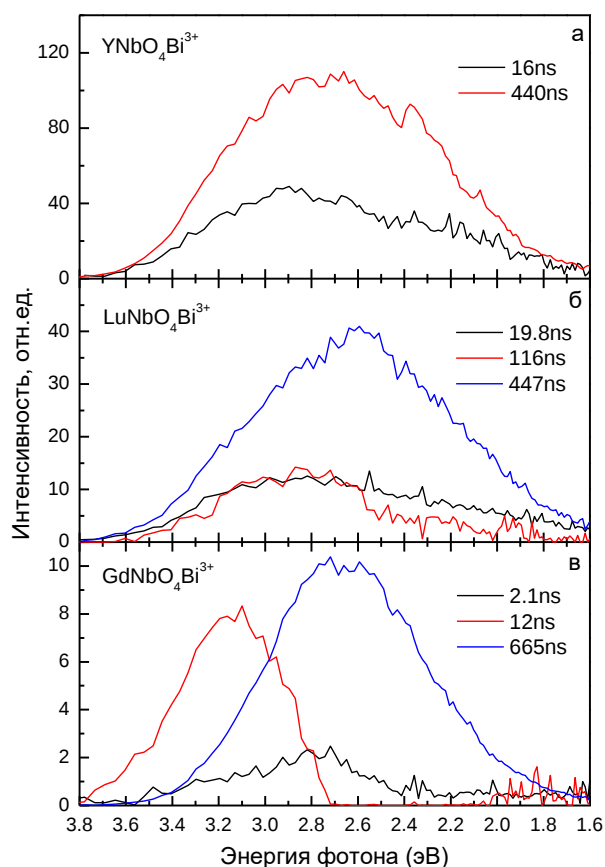


Рисунок 4. Спектры катодолюминесценции с временным разрешением, измеренные для легированных висмутом образцов YNbO₄:Bi (а), LuNbO₄:Bi (б) и GdNbO₄:Bi (в) при комнатной температуре

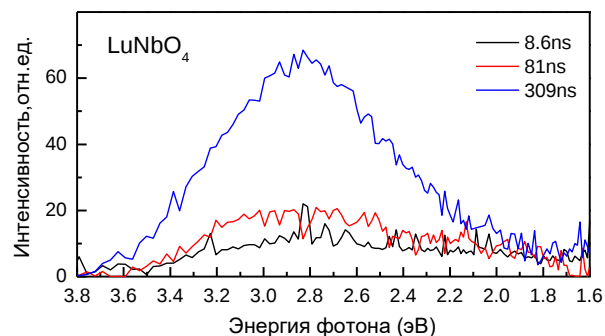


Рисунок 5. Спектры катодолюминесценции с временным разрешением, измеренные для нелегированного LuNbO₄ при комнатной температуре

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе проведено исследование кинетики затухания катодолюминесценции в наносекундном временном диапазоне. Проведено сравнение с полученными ранее результатами катодо- и фотолюминесценции. Для образца YNbO₄:Bi измерена зависимость значений времени затухания от температуры, в широком диапазоне 5–295 К. На основании проведенных как в этой работе, так и в работе [1], исследований спектральных и кинетических характе-

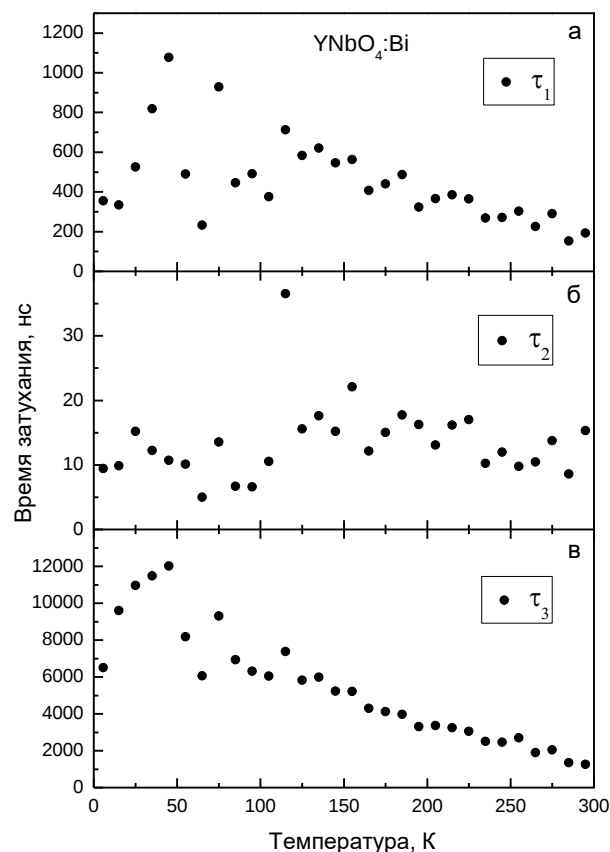


Рисунок 6. Значения времени затухания трех различных компонент для образца YNbO₄:Bi, измеренные в температурном диапазоне 5–295 К

тик катодолюминесценции при облучении электронным пучком возможно сделать следующие выводы:

Интенсивные широкие полосы катодолюминесценции исследованных ниобатов (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi имеют комплексную структуру и, как было показано в работе по изучению фотолюминесценции тех же самых образцов [2], могут являться суперпозицией полос свечения автолокализованных экситонов и экситонов, локализованных около одиночных и парных центров Bi³⁺.

Результаты исследования кинетики затухания люминесценции, представленные в этом исследовании, показали, что, по крайней мере, три ярко выраженных компонента наблюдаются в кинетике затухания при T = 5 К. Из трех компонентов основной вклад в светосумму вносит медленный микросекундный компонент со временем затухания в диапазоне 2–9 мкс. Исследование кинетики в длинном микросекундном диапазоне уже было проведено в работе по фотолюминесценции [2]. Интерес представляет наносекундная кинетика собственного свечения образцов в ультрафиолетовой области спектра. Наличие нескольких быстрых компонент говорит о комплексной структуре это свечения. Кроме быстрого наносекундного свечения, также во всех образцах наблюда-

ется сверхбыстрое свечение со временем затухания менее 1 нс, которое относится к так называемой внутризонной люминесценции (ВЗЛ/IBL) [1].

Благодарность

Данное исследование публикуется в рамках реализации грантового финансирования научных проектов Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан, Грант № AP 19177651. Авторы выражают благодарность А. Красникову (Institute of Physics, University of Tartu) и С. Омелькову (Institute of Physics, University of Tartu) за помощь с проведением экспериментов и расчетов, а также М. Баран (Institute of Electronic Materials Technology, Warsaw, Poland) за синтез образцов.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Кисабекова А., Красников А., Асылбаев Р., Баубекова Г. Катодолюминесцентные характеристики легированных висмутом ниобатов лантаноидов // Вестник Евразийского Национального университета имени Л.Н. Гумилева. Серия: Физика. Астрономия. – 2024. – № 4 (149) (принята в печать) (Kisabekova A., Krasnikov A., Asylbaev R., Baubekova G. Katodoluminescentnye kharakteristiki legirovannykh vismutom niobatov lantanoidov // Vestnik Evraziyskogo Natsional'nogo universiteta imeni L.N. Gumileva. Seriya: Fizika. Astronomiya. – 2024. – No. 4 (149) (accepted for publication). [In Russ.]).
2. Baran M., Belikov K., Kissabekova A., Krasnikov A., Lushchik A., Mihokova E., Tsiumra V., Vasylechko L., Zazubovich S., Zhydachevskyy Ya. Origin of luminescence in Bi³⁺-doped lanthanide niobates // Journal of Alloys and Compounds. – 2021. – Vol. 859. – P. 157800. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.157800>
3. Blasse G., Bril A., J. Investigations on Bi-Activated Phosphors // The Journal of Chemical Physics. – 1968. – Vol. 48. – No. 1. – P. 217–222. <https://doi.org/10.1063/1.1667905>
4. Sun, H.-T.; Zhou, J.; J. Qui, J. Recent advances in bismuth activated photonic materials // Progress in Material Science – 2014. – Vol. 64. – P. 1–72. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2014.02.002>
5. Bahng H., Oh E. S., Seo S. H., Kim J. S., Lee M., Park H. L., Choong-il Lee, Kim G.C., and Kim K. J. Cathodoluminescence Study of Bi³⁺-doped YNbO₄ Phosphor. // Phys. stat. sol. – 2002. – Vol.191. – No. 1. – P. 291–295. [https://doi.org/10.1002/1521-396X\(200205\)191:1<291::AID-PSSA291>3.0.CO;2-N](https://doi.org/10.1002/1521-396X(200205)191:1<291::AID-PSSA291>3.0.CO;2-N)
6. Sun, H.-T.; Zhou, J.; J. Qui, J. Recent advances in bismuth activated photonic materials // Progress in Material Science. – 2014. – Vol. 64. – P. 1–72. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2014.02.002>
7. Awater R. H. P., Dorenbos P., Towards a General Concentration Quenching Model of Bi³⁺ Luminescence // J. Lumin. – 2017. – No. 188. – P. 487–489. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2017.05.011>
8. Park T.-K., Ahn H.-C., Mho S.-I. High Concentration of Bi³⁺ Incorporated into RNbO₄:Eu³⁺ (R = La, Y, Gd) as Red Phosphors for White LED Applications // Journal of the Korean Physical Society. – 2008. – Vol. 52. – No. 2. – P. 431–434. <https://doi.org/10.3938/jkps.52.431>
9. Shin S.H., Jeon D.Y., Suh K.S. Charge-transfer nature in luminescence of YNbO₄:Bi blue phosphor // J. Appl. Phys. – 2001. – Vol. 90. – No. 12. – P. 5986–5990. <https://doi.org/10.1063/1.1413954>
10. Liu Ch., Zhou W., Shi R., Lin L., Zhou R., Chen J., Li Zh., Liang H. Host-sensitized luminescence of Dy³⁺ in LuNbO₄ under ultraviolet light and low-voltage electron beam excitation: energy transfer and white emission / J.Mater. Chem. C. – 2017. – No. 5. – P. 9012. <https://doi.org/10.1039/c7tc03260a>
11. Han Ch.-H., Kim H.-J., Chang H., Kwon Lee S., Park H.D. Luminescent Properties of YNbO₄:Bi Phosphors // Journal of The Electrochemical Society. – 2000. – No. 147(7). – P. 2800–2804. <https://iopscience.iop.org/article/10.1149/1.1393609>
12. Bang, J.H.; Oh, E.S.; Seo, S.H.; Kim, J.S.; Lee, M.; Park, H.L.; Lee, C.-I.; Kim, C.C.; Kim, K.J. Cathodoluminescence study of Bi³⁺-doped YNbO₄ phosphor // Phys. Status Solidi A. – 2002. – Vol. 191. P. 291–295. [https://doi.org/10.1002/1521-396X\(200205\)191:13.0.CO;2-N](https://doi.org/10.1002/1521-396X(200205)191:13.0.CO;2-N)
13. Omelkov S. I., Nagirnyi V., Vasil'ev A. N., Kirm M. New features of hot intraband luminescence for fast timing // Journal of Luminescence. – 2016. – No. 176. – P. 309317. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2016.03.039>

ЛАНТАНИД НИОБАТТАРЫНЫҢ (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi³⁺ КАТОДОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯСЫНЫҢ
СПЕКТРАЛДЫ-КИНЕТИКАЛЫҚ СИПАТТАМАСЫ

А. А. Кисабекова^{1,3*}, Н. А. Испулов², Р. Н. Асылбаев¹, А. Б. Базарбек³,
А. Д. Акылбекова³, А. Ж. Жумабеков², Е. К. Жетписбаев¹

¹⁾ *Ә. Марғұлан атындағы Павлодар педагогикалық университетін, Павлодар, Қазақстан*

²⁾ *Торайғыров университеті, Павлодар, Қазақстан*

³⁾ *Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: akisabekova5@mail.ru

Зерттеу медицина, өнеркәсіп, ғылым сияқты адам қызметінің әртүрлі салаларында қолданылатын потенциалды фосфорлар ретінде қызығушылық тудыратын висмут ионымен лантаноидты ниобаттарды зерттеуге арналған. Бұл жұмыста NbO₄:Bi³⁺ ниобаттарының (Y,Lu,Gd) катодолюминесценциясына, атап айтқанда Уақытша шешілетін спектрлік сипаттамаларға, сондай-ақ негізгі спектрлік жолақтар үшін люминесценцияның әлсіреу кинетикасына эксперименттік зерттеу жүргізілді. YNbO₄ үлгісі үшін катодолюминесценцияның ыдырау уақыты мәндерінің температураға тәуелділігі ұсынылған: Bi³⁺ 5–295 K температуралық диапазонында 10 K аралықпен өлшенген. осы зерттеуде жасалған люминесценцияның ыдырау кинетикасын зерттеу төмен температурада ыдырау кинетикасында кем дегенде үш айқын компоненттің байқалатынын көрсетті. Үш компоненттің ішінде жарық қосындысына 2–9 мкс диапазонында ыдырау уақыты бар баяу микросекундтық компонент негізгі үлес қосады. Дегенмен, спектрдің ультракүлгін аймағындағы үлгілердің өзіндік жарқырауының наносекундтық кинетикасы ерекше қызығушылық тудырады. Бірнеше жылдам компоненттердің болуы автолокализацияланған экситондардың жарқыл жолақтарының суперпозициясымен байланысты бұл жарқылдың күрделі құрылымын көрсетеді. Алынған мәліметтер функционалды материалдарды одан әрі дамытуда ғылыми және практикалық қызығушылық тудырады.

Түйін сөздер: катодолюминесценция, ниобаттар, висмут, спектроскопия, жарықдиодтар.

SPECTRAL-KINETIC CHARACTERISTICS OF CATHODOLUMINESCENCE
OF LANTHANIDE NIOBATES (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi³⁺

A. A. Kysabekova^{1,3*}, N. A. Ispulov², R. N. Assylbayev¹, A. B. Bazarbek³,
A. D. Akylbekova³, A. Zh. Zhumabekov², E. K. Zhetpisbayev¹

¹⁾ *Margulan University, Pavlodat, Kazakhstan*

²⁾ *Toraighyrov University, Pavlodat, Kazakhstan*

³⁾ *L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan*

* E-mail for contacts: akisabekova5@mail.ru

The study is devoted to the study of lanthanide niobates doped with bismuth ions, which are of interest as potential phosphors used in various fields of human activity, such as medicine, industry, and science. In this paper, an experimental study of the cathodoluminescence of niobates (Y,Lu,Gd)NbO₄:Bi³⁺, namely, spectral characteristics with time resolution, as well as the kinetics of luminescence attenuation for the main spectral bands, is carried out. The temperature dependence of the cathodoluminescence attenuation time for the YNbO₄ sample is presented.:Bi³⁺ measured in the temperature range of 5–295 K with an interval of 10 K. The study of the kinetics of luminescence attenuation made in this study showed that at least three pronounced components are observed in the kinetics of attenuation at low temperature. Of the three components, the main contribution to the light sum is made by a slow microsecond component with a decay time in the range of 2–9 microseconds. However, the nanosecond kinetics of intrinsic luminescence of samples in the ultraviolet region of the spectrum is of particular interest. The presence of several fast components indicates the complex structure of this glow associated with the superposition of the glow bands of autolocalized excitons. The data obtained are of both scientific and practical interest in the further development of functional materials.

Keywords: cathodoluminescence, niobates, bismuth, spectroscopy, light-emitting diodes.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-153-163>

УДК 539.213.26

ИЗУЧЕНИЕ МЕХАНИЗМОВ СТРУКТУРНЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ СТАБИЛИЗИРОВАННЫХ КЕРАМИК НА ОСНОВЕ ЦИРКОНАТОВ ПРИ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОМ ОБЛУЧЕНИИ

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, М. Б. Кабиев¹, И. Е. Кенжина^{2,3}, А. У. Толенова³

¹⁾ Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

²⁾ РГП «Институт ядерной физики» МЭ РК, Алматы, Казахстан

³⁾ Satbayev University, Алматы, Казахстан

* E-mail для контактов: kozlovskiy.a@inp.kz

В работе приведено всестороннее описание результатов экспериментальных работ, связанных с изучением механизмов накопления радиационных повреждений при облучении тяжелыми ионами Xe^+ исследуемых образцов $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в нестабилизированном состоянии, и стабилизированных 0,15 М MgO и Y_2O_3 , добавление которых согласно данным рентгенофазового анализа приводит к формированию в структуре примесных включений в виде MgO и $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ зерен, которые создают буферный защитный слой в межзеренном пространстве, наличие которого приводит к увеличению сопротивляемости к радиационно-индуцированным процессам разупрочнения и снижения теплофизических параметров. В ходе определения зависимостей изменения деформационных искажений, возникающих в результате накопления структурных напряжений в кристаллической структуре и аморфизации, определение которой проводилось на основе изменений интенсивности дифракционных максимумов было определено равновероятное влияние обоих процессов при высокодозном облучении на деградацию приповерхностного поврежденного слоя, а также положительное влияние стабилизирующих компонент на сдерживание аморфизации и деформационного искажения при высокодозном облучении. Анализ изменения прочностных и теплофизических параметров $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами показал, что добавление в состав керамик стабилизирующих добавок в виде MgO и Y_2O_3 приводит к повышению устойчивости к радиационно-индуцированным процессам разупрочнения и деградации теплопроводности, обусловленных накоплением структурных деформационных искажений и метастабильных включений в поврежденном слое.

Ключевые слова: радиационные повреждения, разупрочнение, деградация прочностных свойств, деформационные искажения, тяжелые ионы.

ВВЕДЕНИЕ

Интерес к стабилизации и повышению устойчивости к внешним воздействиям, включая накопление радиационных повреждений, керамических материалов на основе тугоплавких соединений, в том числе цирконатов, проявляется в последние годы достаточно активно. Причиной столь большого интереса к керамическим материалам является возможность использования их в качестве конструкционных материалов для ядерных и термоядерных реакторов, основными принципиальными отличиями использования которых, является возможность повышения рабочих температур активной зоны, а также увеличения степени выгорания ядерного топлива, что снижает концентрации накопленного отработанного ядерного топлива [1–3]. При этом в отличие от сталей и сплавов, керамические материалы, не смотря на то, что обладают достаточно низкими показателями теплофизических параметров, за счет более высоких показателей устойчивости к температурным перепадам, а также возможностью совмещения их использования с различными типами конструкционных материалов, а также теплоносителей делают керамики наиболее перспективными материалами в ближайшем будущем в области создания и расширения потенциала использования альтернативных источников энергии [4–5].

В свою очередь, использование стабилизирующих добавок в виде простых оксидов – MgO , CaO , Y_2O_3 , как правило, применяется с целью изменения прочностных или теплофизических параметров керамик, результатом которых являются высокопрочные керамики с тем же самым фазовым составом, содержащим небольшие включения в виде примерных фаз, или фазовых включений, связанных с процессами замещения или внедрения [6–8]. Как известно, при добавлении стабилизирующих элементов в состав керамики формирование твердых растворов происходит за счет замещения катионов Zr^{4+} трехвалентными катионами стабилизаторов, в результате которого происходит образование кислородной вакансии, возникновение которой обеспечивает поддержание электронейтральности решетки [9–11]. Также использование стабилизирующих допантов может оказать эффект структурных превращений, связанных с трансформацией структуры пироклора в структуру флюорита, результатом которой является изменение теплофизических и прочностных параметров, обусловленных изменениями концентрации кислородных вакансий в объеме керамик [12, 13]. Следует также отметить, что изучение механизмов радиационных повреждений, а также их сдерживания за счет изменения структурных особенностей керамик путем добавления стабилизирующих добавок, уменьшения размеров зерен с целью создания эф-

фектов дисперсного упрочнения, внедрения примесей требует углубленных исследований, в виду разнообразия типов керамик, а также способов их модификации [14–15]. При этом механизмы накопления радиационных повреждений имеют явно выраженную зависимость от температуры облучения, что приводит к тому, что полученные данные радиационной стойкости для облучения при комнатных температурах будут не совсем корректны при описании эффектов разупрочнения, вызванных облучением при высоких температурах, при которых инициируются процессы диффузии точечных и вакансионных дефектов, а также оказывает влияние тепловое расширение кристаллической структуры, изменение амплитуды колебаний которой также способствует ускорению процессов миграции дефектов как вглубь образцов, так и к поверхности, результатом чего является формирование блистеров или газонаполненных включений в приповерхностном слое [16–18].

Основная цель данной работы заключается в определении влияния стабилизирующих добавок MgO и Y_2O_3 на повышение сопротивляемости $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик к радиационным повреждениям, вызванным облучением тяжелыми ионами Xe^{23+} при температуре облучения 1000 К. Интерес к данной тематике исследований обусловлен необходимостью получения новых данных о структурных изменениях в керамических материалах, вызванных прямым воздействием ионизирующего излучения, а также определении возможностей использования стабилизирующих добавок для повышения устойчивости прочностных и структурных особенностей керамик. Выбор объектов для исследований основан на совокупности свойств данного типа керамик, которые определяют возможности эксплуатации их в экстремальных условиях, в частности, при высоких температурах, а также больших дозах облучения, совмещенных с температурным воздействием. При этом использование стабилизирующих добавок для направленной модификации прочностных и структурных характеристик позволяет увеличить сопротивляемость к радиационным повреждениям за счет эффекта дислокационного упрочнения, а также наличия межфазных границ, формирование которых происходит за счет фаз внедрения или полиморфных трансформаций при высоких концентрациях допанта. Сам выбор допантов основан на возможностях внесения структурных изменений в состав керамики за счет частичного замещения катионов циркония катионами иттрия или магния, что в свою очередь приводит к изменению плотности упаковки кристаллической структуры, и как следствие, уплотнению керамик и возникновению межфазных границ. При этом помимо структурных особенностей, эффекты допирования способны оказать и на изменение теплофизических свойств керамик, что является немаловажным фактором в области керамических материалов, используемых в ядерной энергетике.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В качестве исходных компонент для синтеза использовались порошки Nd_2O_3 , ZrO_2 , MgO , Y_2O_3 , химическая чистота которых составляла порядка 99,95%, а сами порошки были приобретены у компании Sigma Aldrich (США).

Механоактивация порошков с целью получения однородной смеси была осуществлена с использованием планетарной мельницы PULVERISETTE 6 (Fritsch, Берлин, Германия), в основе принципа которой лежит ударное воздействие мелющими шарами в мелющем стакане на перемалываемые порошки в заданном стехиометрическом соотношении, навеска которых осуществляется с использованием весов Radwag (Radwag Wagi Elektroniczne, Радом, Польша). Скорость помола составляет порядка 250–400 об/мин., время помола составляет порядка 30 мин.

Отжиг образцов керамик проводился в муфельной печи Nabertherm LE 4/11/R6 (Nabertherm, Лилиенталь, Германия). Скорость нагрева образцов до заданной температуры составляла 20 °С/мин, температура отжига составила 1200 °С, время отжига 5 часов.

Изучение структурных особенностей керамик, изменение которых обусловлено процессам радиационных повреждений, вызванных облучением, было проведено с применением метода рентгеновской дифракции. Дифрактограммы были получены с помощью рентгеновского дифрактометра D8 ADVANCE ECO (Bruker, Карлсруэ, Германия).

Для подтверждения структурных изменений в $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамиках в результате внешних воздействий использовался метод рамановской спектроскопии, реализованный с использованием рамановского спектрометра Enspectr M532 (Spectr-M LLC, Черноголовка, Россия).

Изучение механических свойств исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик в зависимости от изменений концентрации радиационных повреждений, вызванных облучением тяжелыми ионами в составе было проведено с использованием метода определения твердости, а также устойчивости к однократному сжатию.

Эффект разупрочнения оценивался путем измерения изменений величины твердости (ΔH) в исходном и облученном состоянии, что позволило определить кинетику деградации механических свойств керамик в зависимости от степени структурного разупорядочения и объемного распухания.

Моделирование процессов радиационных повреждений в $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамиках, сравнимых с воздействием осколков деления ядерного топлива было осуществлено путем облучения исследуемых образцов керамик тяжелыми ионами Xe^{23+} с энергией порядка 230 МэВ (1,75 МэВ/нуклон). Облучение образцов проводилось при температуре порядка 1000 К, выбор которой обусловлен возможностями моделирования процессов радиационных повреждений, максимально приближенных к реальным условиям эксплуата-

ции данного типа керамик в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива, эксплуатационные режимы которого связаны с высокими температурами, при которых увеличивается степень выгорания топлива, а также эффективность энергоотдачи.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Одним из способов оценки влияния стабилизирующих добавок на устойчивость к радиационным повреждениям, накопление которых связано с процессами взаимодействия налетающих ионов с кристаллической структурой, результатом которых является образование, точечных, вакансионных и дислокационных дефектов, а также изменения электронной плотности, является метод рентгеноструктурного анализа, использование которого позволяет с достаточно высокой точностью определить кинетику структурных изменений, а также на их основе установить тип и характер деформационных искажений вызванных облучением. При этом сравнительный анализ изменения структурных параметров образцов при одних и тех же условиях облучения в свою очередь позволяет определить влияния различных стабилизирующих добавок на устойчивость кристаллической структуры с деградации и разупорядочению.

На рисунке 1 приведены результаты рентгеновской дифракции исследуемых образцов нестабилизированных $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик и стабилизированных 0,15 М MgO и 0,15 М Y_2O_3 в зависимости от флюенса облучения тяжелыми ионами при высокотемпературном облучении.

Общий вид представленных зависимостей свидетельствует об отсутствии процессов полиморфных трансформаций, вызванных облучением тяжелыми ионами, которые наблюдались для ZrO_2 керамик при аналогичных воздействиях [19–21]. Полученные зависимости изменений дифракционных картин для всех трех типов керамик, на которых отсутствуют эффекты радиационно-стимулированных процессов полиморфных трансформаций свидетельствуют о высокой устойчивости $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик к подобным структурным изменениям в сравнении с ZrO_2 керамиками. Основные изменения, установленные при анализе полученных рентгеновских дифрактограмм связаны со смещением положения дифракционных максимумов в область малых углов, что свидетельствует о деформационном характере изменения структуры, вызванных искажением межплоскостных расстояний, а также разупорядочением кристаллической решетки, а также изменениями интенсивности и формы дифракционных максимумов, которое проявляется в основном в случае высокодозного облучения и обусловлено эффектами структурного разупорядочения и частичной аморфизации поврежденного слоя. При этом анализ наблюдаемые изменений в зависимости от флюенса облучения позволяет сделать вывод о том, что при малых флюенсах облучения основные

изменения обусловлены деформационными искажениями, накопление которых выражается в смещении дифракционных максимумов, а при флюенсах выше 10^{12} ион/см² наблюдаемое явно выраженное снижение интенсивности дифракционных рефлексов свидетельствует о формировании в структуре поврежденного слоя метастабильных включений, концентрация которых приводит к дестабилизации кристаллической структуры и ее частичной аморфизации. При этом общий анализ представленных зависимостей дифракционных картин в сравнении нестабилизированных образцов керамик с результатами для стабилизированных керамик свидетельствуют о положительном влиянии стабилизирующих добавок на повышение сопротивляемости к структурному разупорядочению, вызванному облучением, которое наиболее явно прослеживается при сравнении результатов, полученных для больших флюенсов облучения (выше 10^{13} ион/см²).

В случае нестабилизированных $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик, результаты рентгеновских дифрактограмм для которых представлены на рисунке 1а, отчетливо прослеживается негативное воздействие облучения при флюенсах выше 10^{13} ион/см², выражающееся в резком снижении интенсивности дифракционных рефлексов, изменение которых свидетельствует о формировании в структуре дефектной фракции, что согласуется с результатами работы [22], в которой было установлено, что сильно выраженное снижение интенсивностей обусловлено образованием дефектных включений, имеющих аморфноподобную природу, формирование которых происходит в результате катионного разупорядочения, вызванного искажением химических связей, а также образованием большого количества кислородных вакансий в структуре.

В случае образцов стабилизированных $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик изменения интенсивности и формы дифракционных рефлексов менее выражены, чем в случае нестабилизированных керамик, из чего следует положительное влияние стабилизирующих добавок на устойчивость керамик к разупорядочению.

На рисунке 2 приведены результаты сравнительного анализа изменения интенсивности и формы дифракционного рефлекса в области $2\theta = 28\text{--}30^\circ$, являющегося наиболее интенсивным рефлексом фазы $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, изменение интенсивности и формы которого в зависимости от флюенса облучения свидетельствует о скорости накопления структурных деформационных искажений в поврежденном слое, а также разупорядочении поврежденного слоя керамик. В свою очередь сравнительный анализ результатов для нестабилизированных образцов керамик и образцов, стабилизированных MgO и Y_2O_3 , представленный на рисунке также отражает влияния стабилизирующего допанта на степень структурного разупорядочения, проявляющейся в изменениях дифракционных картин образцов в зависимости от флюенса облучения.

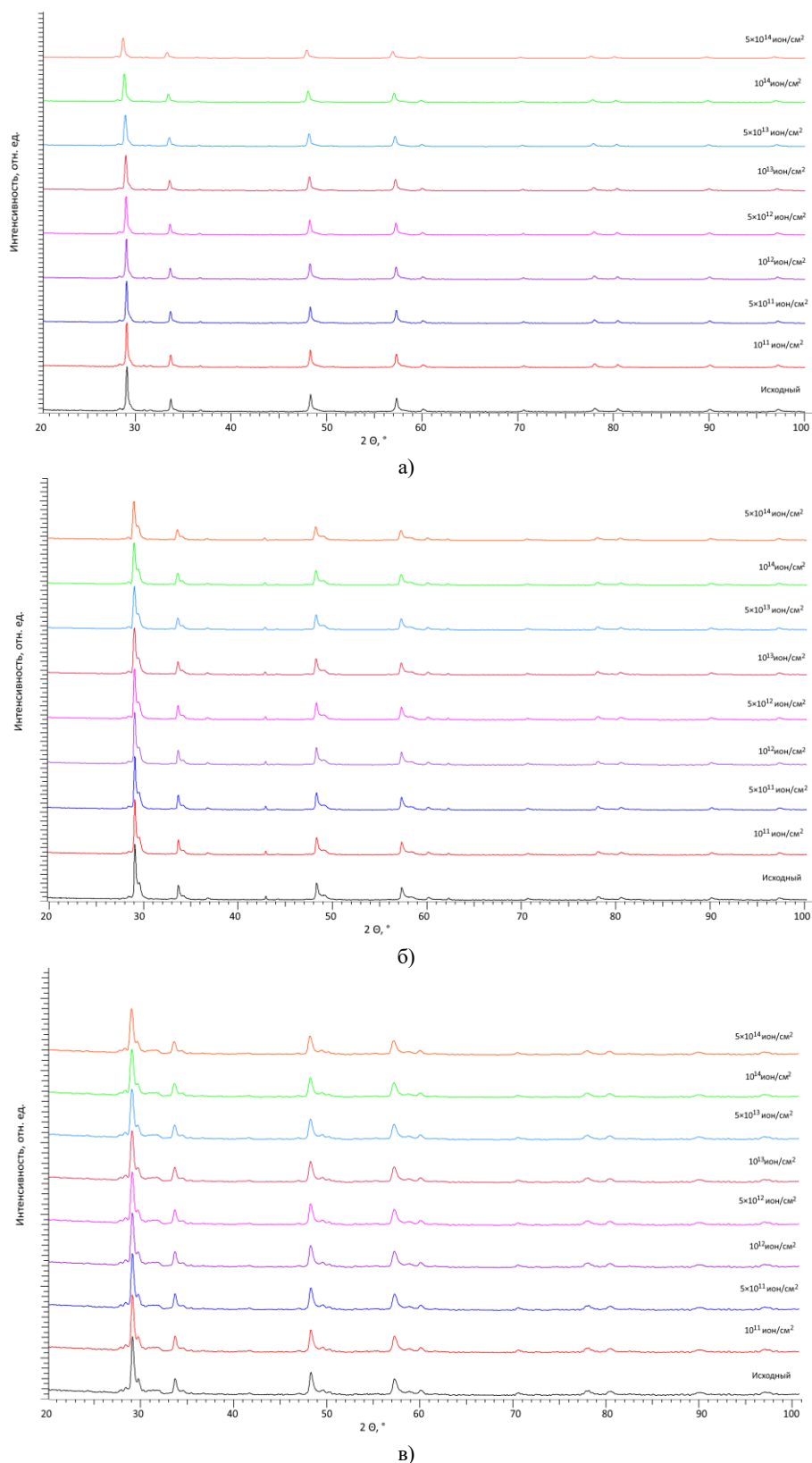


Рисунок 1. Результаты рентгеновской дифракции в зависимости от флюенса облучения тяжелыми ионами: исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик (а); исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизированных 0,15 М MgO (б); исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик стабилизированных 0,15 М Y_2O_3 (в)

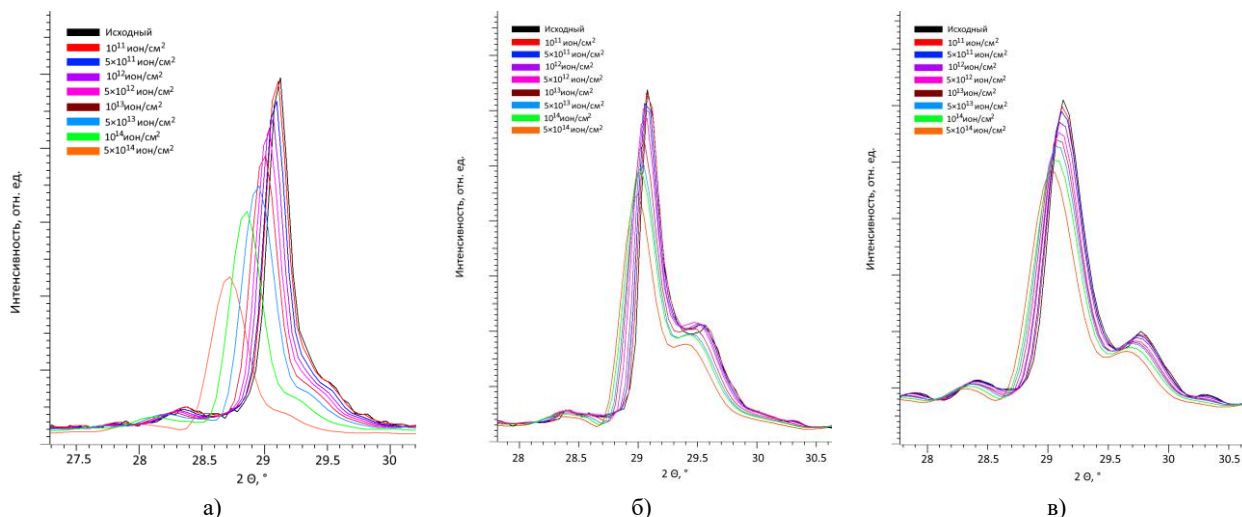


Рисунок 2. Результаты сравнительного анализа изменения основного дифракционного рефлекса при $2\theta=29^\circ$, изменение формы и интенсивности которого свидетельствует о накоплении деформационных искажений растягивающего типа: $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики (а); $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики стабилизированные 0,15 М MgO (б); $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики стабилизированные 0,15 М Y_2O_3 (в)

На дифрактограммах явно прослеживается два типа структурных изменений, характеризующихся различными факторами, влияние которых можно оценить из анализа формы и интенсивности дифракционных рефлексов. В случае смещений положения дифракционных максимумов в структуре керамика возникают деформационные искажения, при этом смещение относительно положения максимума характеризует тип деформационных искажений (растягивающие или сжимающие искажения). Снижение интенсивности в свою очередь характеризует изменение концентрации дефектных включений в структуре образцов, увеличение концентрации которых обусловлено разупорядочением кристаллической структуры, а также формированием эффектов перекрытия структурно – изолированных дефектных областей в случае высокодозного облучения.

Согласно представленным данным изменений интенсивности и положения дифракционных рефлексов, представленных на рисунке 2 видно, что наиболее явно выраженные смещения положения рефлексов наблюдаются при флюенсах выше $5 \cdot 10^{12}$ ион/см², при этом характер смещений свидетельствует о формировании в структуре деформационных искажений растягивающего типа, характер и величина которых имеет прямую зависимость от флюенса облучения. При этом более выраженные изменения смещений рефлексов при флюенсах выше $5 \cdot 10^{12}$ ион/см² обусловлены эффектами формирования в структуре поврежденного слоя перекрытия дефектных областей, возникающих при взаимодействии налетающих ионов с кристаллической структурой вдоль траектории движения ионов в материале, что в случае увеличения флюенса облучения приводит к тому, что данные структурно – измененные локальные области, размеры которых, согласно ряду оценочных работ [23–24] составляют порядка 3–10 нм, перекрывают друг дру-

га, в результате чего структурные изменения становятся более выраженными, за счет эффекта наложения деформационных искажений, и как следствие, формирования метастабильных структурно – деформированных областей. При этом, анализируя наблюдаемые изменения смещений дифракционных рефлексов в сравнении нестабилизированных керамик с результатами для керамик с добавлением в состав стабилизирующих добавок, можно проследить влияние добавок на увеличение устойчивости к деформационному распуханию. При добавлении в состав керамик стабилизирующих добавок изменения интенсивностей менее выражены как в случае уменьшения интенсивностей, так и смещений рефлексов.

На рисунке 3 приведены результаты оценки величины объемного распухания исследуемых керамик в зависимости от величины атомных смещений, которая была рассчитана на основе результатов моделирования ионизационных потерь при взаимодействии налетающих ионов с кристаллической структурой керамик [25]. Определение величины объемного распухания было осуществлено путем сравнительного анализа величин объемов кристаллической решетки в исходном и облученном состоянии. Величина приведена в процентном соотношении, отражающей величину изменений, связанной с деформационным искажением кристаллической структуры в результате накопления структурных повреждений. Данные изменения отражают степень структурного деформационного искажения кристаллической решетки, которое в случае кубического типа имеет изотропный характер, в виду одинаковых размеров граней кристаллической кубической ячейки. При этом увеличение величины ΔV в сравнении с исходными значениями объема кристаллической решетки необлученных образцов свидетельствует о накоплении в структуре растягивающих деформационных искажений, появ-

ление которых обусловлено формированием структурных дефектов, а также кислородных вакансий при искажении кристаллической структуры, а также ионизационных процессов приводящих к разупорядочению, а также атермическим эффектам, обусловленным трансформационными процессами передачи кинетической энергии налетающих ионов в тепловую энергию при соударениях.

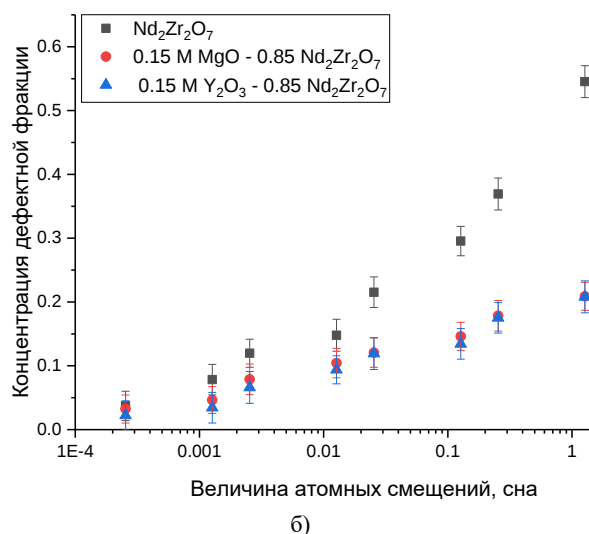
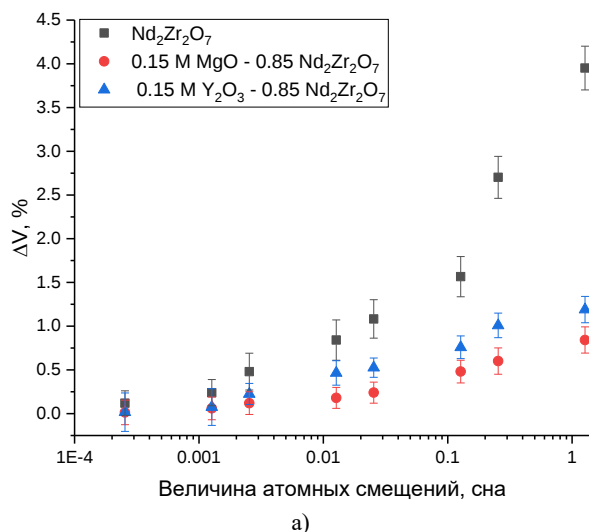


Рисунок 3. Результаты объемного распухания в $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамиках при изменении флюенса облучения (данные представлены в виде зависимости от величины атомных смещений (а) и результаты оценки концентрации дефектной фракции в составе поврежденного слоя керамики при увеличении флюенса облучения (б))

Сравнительный анализ трендов изменения величины ΔV показал, что добавление стабилизирующих добавок приводит к сдерживанию процессов объемного распухания примерно в 4,5 раза для образцов стабилизированных MgO и 3,2–3,3 раза для образцов стабилизированных Y_2O_3 . При этом тренд сопротивляемости к распуханию сохраняется во всем измеряемом диапазоне флюенсов облучения. Следует также

отметить, то что в при больших флюенсах облучения ($5 \cdot 10^{13}$ – $5 \cdot 10^{14}$ ион/см²) добавление стабилизирующих допантов приводит к более выраженному сдерживанию процессов деформационного распухания в сравнении с результатами полученными для нестабилизированных образцов. Так, в случае нестабилизированных образцов $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик увеличение флюенса облучения с $5 \cdot 10^{13}$ до $1 \cdot 10^{14}$ ион/см² приводит к увеличению величины ΔV более чем в 2,7 раза (с 1,56% до 3,95%), в то время как для стабилизированных керамик изменение величины ΔV значительно меньше (с 0,5% до 0,8% в случае добавления стабилизатора MgO и с 0,75% до 1,2% в случае добавления стабилизатора Y_2O_3). Данные различия обусловлены эффектом сдерживания структурных искажений за счет наличия межфазных границ, которые служат сдерживающими барьерами, препятствующими миграции точечных и вакансионных дефектов. При этом сдерживание миграции прослеживается при высоких флюенсах облучения, при которых концентрация структурных повреждений весьма значительна за счет увеличения эффекта перекрытия дефектных областей, а также в случае перекрытия, формирования структурно – разупорядоченных включений, о наличие которых свидетельствует изменение интенсивности и формы дифракционных максимумов, представленные на рисунке 3а.

Определение концентрации дефектной фракции в составе керамик было осуществлено согласно методике указанной в работе [22], в основе которой лежит анализ изменения интенсивностей дифракционных рефлексов, изменение которых обуславливает эффекты, связанные с накоплением метастабильных включений, вызванных катионным разупорядочением, а также дестабилизацией кристаллической решетки. Результаты оценки вклада дефектной фракции в составе керамик представлены на рисунке 3б.

Согласно оценки концентрации дефектной фракции, связанной с процессами разупорядочения при поверхностного поврежденного слоя было установлено, что добавление в состав керамик стабилизирующих добавок приводит к более чем двухкратному снижению концентрации дефектных включений, при этом скорость накопления дефектной фракции в случае высокодозного облучения для стабилизированных керамик значительно ниже чем в случае нестабилизированных керамик, из чего следует вывод, что наличие включений, формирование которых обусловлено стабилизирующими допантами приводит к сдерживанию миграционных процессов, что в свою очередь положительно сказывается на разупорядочении и структурной деградации поврежденного слоя.

Определение величин остаточных механических напряжений, формирование которых связано с процессами ионизации при взаимодействии налетающих ионов с кристаллической структурой керамик, а также вызванных деформационных искажений, связанных с деформацией химических связей и перераспреде-

нию электронной плотности, проводилось с применением метода рамановской спектроскопии. Определение проводилось по величине смещений рамановских спектральных мод E_g при 302 см^{-1} , F_{2g} при 400 и 584 см^{-1} , A_{1g} при 508 см^{-1} . характерных для химических связей $\text{O}-\text{Nd}-\text{O}$, $\text{Zr}-\text{O}$ и $\text{Nd}-\text{O}$ соответственно. При этом изменение данных спектральных линий свидетельствует не только о накоплении структурных искажений, обусловленных остаточными механическими напряжениями, вызванных ионизационными эффектами, но и образовании вакансионных дефектов, связанных с деформацией химических связей. Расчет проводился с применением метода оценки пьезоспектроскопических коэффициентов определенных на основе изменений рамановских спектров. Результаты представлены на рисунке 4 в виде зависимостей изменения величин остаточных механических напряжений от флюенса облучения (выраженного в единицах величины атомных смещений).

Общий вид представленных зависимостей изменения величин остаточных напряжений, величина которых свидетельствует о деформационном искажении химических связей, и как следствие формирования кислородных вакансий в структуре поврежденного слоя свидетельствует о накопительном эффекте, вызванном увеличением флюенса облучения, и как следствие, деформационным искажением кристаллической структуры в результате ионизационных и атермических эффектов, возникающих в поврежденном слое. При этом общий анализ наблюдаемых изменений свидетельствует о том, что формирование примесных включений в керамиках за счет добавления стабилизирующих добавок приводит к увеличению устойчивости к разупорядочению, и как следствие, снижению деформационных искажений, приводящих и образованию вакансионных дефектов в структуре керамик. Сдерживание механизмов разупорядочения за счет буферных включений также может оказывать положительное воздействие на упрочнение керамик, влияющее на увеличение устойчивости к деградации не только структурных характеристик, но и показателей прочностных свойств керамик.

На рисунке 5 представлены результаты оценки изменения величин твердости и устойчивости к однократному сжатию, представленные в виде зависимости максимальной нагрузки при сжатии, при которой наблюдается растрескивание образцов керамик. Выделение области перекрытия дефектов на графиках (пунктирной линией) основано на экспериментальных данных, проведенных ранее исследованиях, в которых было установлено, что в случае размеров дефектных областей, возникающих в результате взаимодействия налетающих ионов, составляющих от 2 до 10 нм, эффект перекрытия будет наблюдаться при флюенсах выше 10^{11} ион/см². При этом в случае увеличения флюенсов выше данной величины наблюдаемые изменения проявляются наиболее интенсивней, чем в случае малых флюенсов.

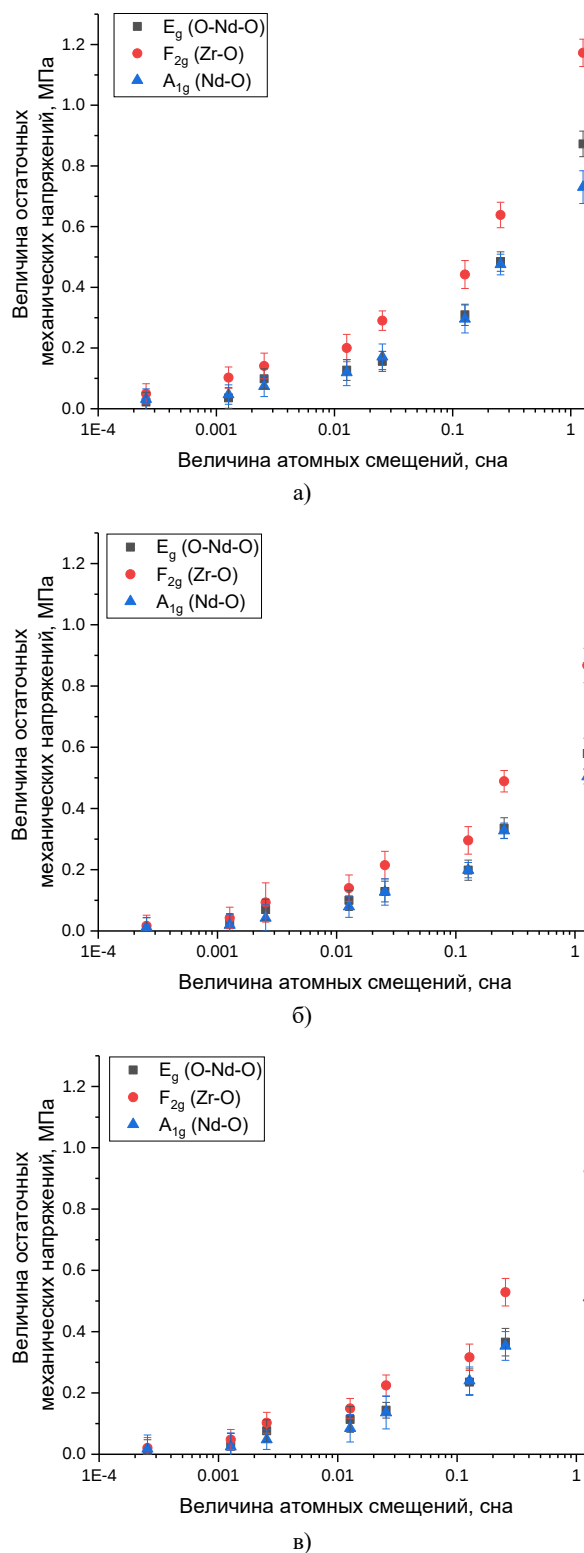


Рисунок 4. Результаты оценки остаточных механических напряжений в приповерхностном слое керамик, определенные с применением метода рамановской пьезоспектроскопии: $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики (а); $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики стабилизированные 0,15 М MgO (б); $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамики стабилизированные 0,15 М Y_2O_3 (в)

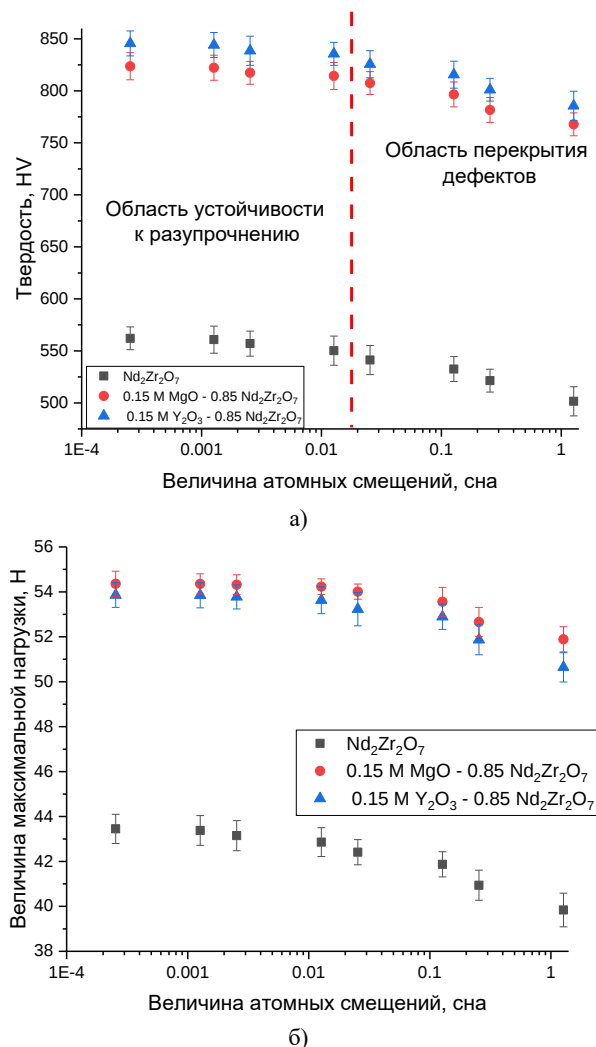


Рисунок 5. Результаты оценки изменения механических характеристик исследуемых $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами: твердости керамик в зависимости от изменения условий облучения (в случае увеличения флюенса) (а); давления, способного выдержать керамикой при однократном сжатии (б)

Общий вид представленных зависимостей изменения прочностных параметров свидетельствует о достаточно высоких показателях устойчивости исследуемых керамик к процессам разупрочнения, вызванным облучением при малых флюенсах облучения (10^{11} – 10^{12} ион/см²), для которых основными структурными изменениями, являются деформационные искажения, обусловленные накоплением структурных искажений и напряжений растягивающего типа в поврежденном слое. Однако, в случае, когда увеличение флюенса облучения приводит к формированию эффекта перекрытия дефектных областей в поврежденном слое керамик, и в изменении структурных параметров начинает играть роль накопления дефектной фракции, наличие которой обусловлено частичной аморфизацией поврежденного слоя, наблюдается снижение прочностных свойств, так как на процессы разупрочнения, наибольшее влияние

оказывают структурные изменения, связанные с накоплением метастабильных сильно деформированных включений, концентрация которых приводит к дестабилизации устойчивости к внешним механическим воздействиям.

На рисунке 6 приведены результаты оценки изменения величины коэффициента теплопроводности исследуемых керамик в зависимости от флюенса облучения (в величинах атомных смещений), отражающие кинетику изменения теплофизических параметров керамик, а также влияния добавления стабилизирующих добавок на сохранения стабильности теплофизических свойств. Общий тренд изменений коэффициента теплопроводности исследуемых керамик в зависимости от флюенса облучения имеют схожий тренд деградации, что и прочностные характеристики, из чего следует, что характер изменений связан с накопительным эффектом структурного разупорядочения, и сдерживающих эффектов, обусловленных наличием примесных включений за счет добавления стабилизирующих добавок. При этом из представленных данных видно, что наиболее значимые изменения коэффициента теплопроводности, наблюдаемые при флюенсах облучения 10^{13} – $5 \cdot 10^{14}$ ион/см², в случае стабилизированных керамик более чем в два раза меньше чем аналогичные изменения в нестабилизированных керамиках, что свидетельствует не только о положительном эффекте добавления стабилизирующих добавок на эффект упрочнения, но и влияние стабилизирующих добавок на сохранение теплофизических параметров, что является весьма важным параметром, определяющим потенциал использования керамических материалов.

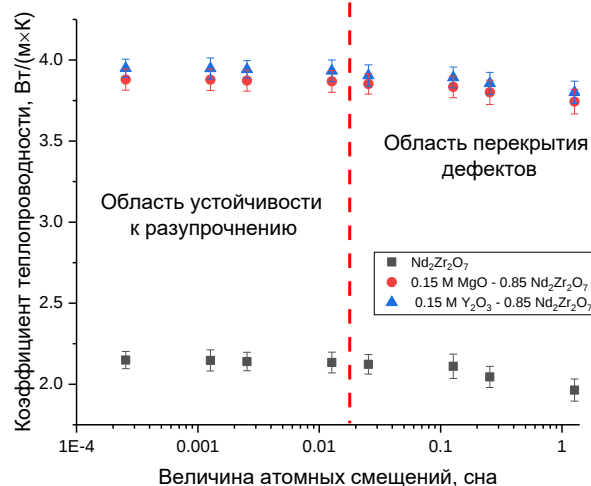


Рисунок 6. Результаты оценки изменения коэффициента теплопроводности керамик в зависимости от флюенса облучения, выраженного в величине атомных смещений

На рисунке 7 представлены результаты сравнительного анализа изменения величины деградации теплопроводности и объемного распухания, связанного с накоплением деформационных искажений в поврежденном слое, препятствующим процессам теплообмена.

Наблюдаемые прямые зависимости изменения величины деградации теплопроводности от степени структурного деградации кристаллической решетки, связанной с деформационным искажением, свидетельствуют о возможности сдерживания процессов снижения теплопроводности за счет добавления стабилизирующих добавок, а также повышения эффективности использования керамик не только в качестве теплопроводящих материалов, но и теплоизоляционных в случае необходимости создания термобарьерных слоев, сдерживающих распространение и выделения тепла, в случае длительного хранения отработанных ядерных отходов.

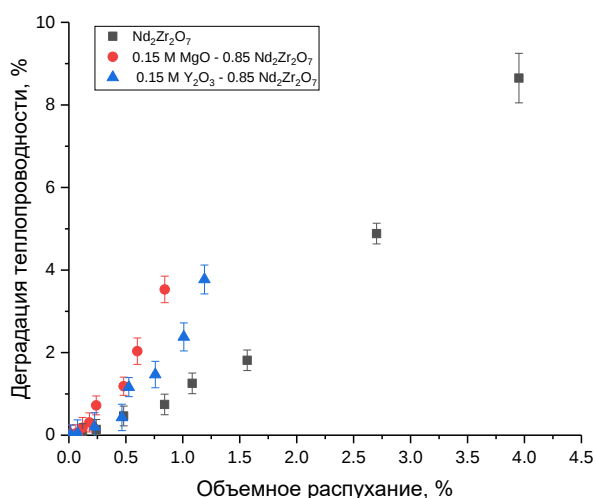


Рисунок 7 Результаты сравнительного анализа изменения величины деградации теплопроводности и объемного распухания, изменение которого обусловлено структурными искажениями

Анализируя полученные зависимости изменения структурных, прочностных и теплофизических параметров Nd₂Zr₂O₇ керамик можно сделать вывод о перспективности использования стабилизирующих добавок для повышения устойчивости керамик к внешним воздействиям, вызванным облучением тяжелыми ионами, а также термическими эффектами обуславливающими структурные изменения, связанные с диффузионными процессами миграции точечных и вакансионных дефектов в поврежденном слое. Из результатов проведенных исследований можно заключить, что добавление стабилизирующих добавок в виде MgO и Y₂O₃ позволяет увеличить сопротивляемость к деградации, вызванной высокотемпературным облучением, а также повысить сопротивляемость к разупрочнению и снижению теплопроводности, что в свою очередь позволяет использовать стабилизированные керамики при более высоких флюенсах облучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены серии экспериментов, направленных на выявление влияния добавления стабилизирующих добавок MgO и Y₂O₃ на устойчивость к накоплению

радиационных повреждений при высокотемпературном облучении тяжелыми ионами Xe⁺ в широком диапазоне флюенсов, позволяющих моделировать эффекты формирования одиночных структурно-деформированных изолированных областей, так и их перекрытие, приводящее к ускорению процессов дестабилизации поврежденного слоя при накоплении структурных дефектов и кислородных вакансий. Выбор условий высокотемпературного облучения обусловлен возможностями моделирования процессов структурных деформаций в керамиках максимально приближенных к реальным условиям эксплуатации. Установлено, что добавление стабилизирующих добавок приводит к снижению скорости деградации при поверхностного слоя керамик, о чем свидетельствует кинетика изменений рентгеновских дифрактограмм в зависимости от флюенса облучения, а также оценка структурных параметров и величины объемного распухания поврежденного слоя. При этом установлено, что наиболее явно эффект сдерживания проявляется при высоких флюенсах облучения $5 \cdot 10^{13}$ – $5 \cdot 10^{14}$ ион/см², для которого характерно формирование метастабильных включений в поврежденном слое, формирование которых обусловлено эффектами структурного разупорядочения при перекрытии и наложении поврежденных областей, возникающих в результате взаимодействия ионов с кристаллической структурой при прохождении через материал. В случае эффекта перекрытия повторное попадание ионов, в структурно-измененные области приводит к более выраженной дестабилизации за счет меньшего структурного сопротивления к процессам дефектообразования, возникающих в результате взаимодействия ионов с кристаллической структурой. Также увеличение структурного разупорядочения в поврежденном слое в случае больших флюенсов облучения может быть обусловлено эффектами снижения теплопроводности, деградация которой происходит за счет формирования структурных искажений и вакансионных дефектов, что в случае трансформации переданной кинетической энергии налетающих ионов в тепловую приводит к более выраженной дестабилизации из за снижения теплопередачи из поврежденной области, что в свою очередь приводит к увеличению структурных деформаций, вызванных атермическими процессами.

На основе проведенных исследований, сделано заключение о перспективности использования стабилизирующих добавок для направленной модификации Nd₂Zr₂O₇ керамик с целью повышения их устойчивости к радиационным повреждениям.

Исследование финансируется Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (No. BR21882237).

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Eriksen T. E., Shoesmith D. W., Jonsson M. Radiation induced dissolution of UO_2 based nuclear fuel – A critical review of predictive modelling approaches // *Journal of Nuclear Materials*. – 2012. – Vol. 420, No. 1–3. – P. 409–423.
2. Matzke H. Radiation damage in nuclear fuel materials: the “rim” effect in UO_2 and damage in inert matrices for transmutation of actinides // *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B*. – 1996. – Vol. 116, No. 1–4. – P. 121–125.
3. Lipkina K. et al. Metallic inert matrix fuel concept for minor actinides incineration to achieve ultra-high burn-up // *Journal of Nuclear Materials*. – 2014. – Vol. 452, No. 1–3. – P. 378–381.
4. Zinkle S. J., Skuratov V. A., Hoelzer D. T. On the conflicting roles of ionizing radiation in ceramics // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2002. – Vol. 191, No. 1–4. – P. 758–766.
5. Hurley D. H. et al. Thermal energy transport in oxide nuclear fuel // *Chemical reviews*. – 2021. – Vol. 122, No. 3. – P. 3711–3762.
6. Ado M. et al. Effect of radiation and substitution of Ce^{4+} at Zr site in $\text{Y}_4\text{Zr}_3\text{O}_{12}$ using collision cascades: a molecular dynamics simulation study // *Journal of Nuclear Science and Technology*. – 2023. – Vol. 60, No. 4. – P. 415–424.
7. Thomé L. et al. Radiation effects in nuclear ceramics // *Advances in Materials Science and Engineering*. – 2012. – Vol. 2012. – No. 1. – P. 905474.
8. Tynyshbayeva K. M. et al. Study of helium swelling and embrittlement mechanisms in SiC ceramics // *Crystals*. – 2022. – Vol. 12, No. 2. – P. 239.
9. Simeone D. et al. Characterization of radiation damage in ceramics: Old challenge new issues? // *Journal of Materials Research*. – 2015. – Vol. 30, No. 9. – P. 1495–1515.
10. Kurapova O. Y. et al. Structure and electrical properties of YSZ-rGO composites and YSZ ceramics, obtained from composite powder // *Electrochimica Acta*. – 2019. – Vol. 320. – P. 134573.
11. Toulemonde M. et al. Nanometric transformation of the matter by short and intense electronic excitation: Experimental data versus inelastic thermal spike model // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2012. – Vol. 277. – P. 28–39.
12. Ghosh B. et al. Defect Engineering in Composition and Valence Band Center of $\text{Y}_2(\text{Y}_x\text{Ru}_{1-x})_2\text{O}_7-\delta$ Pyrochlore Electrocatalysts for Oxygen Evolution Reaction // *Journal of the American Chemical Society*. – 2024. – P. 1–10.
13. Sharma S. K. et al. Response of nonstoichiometric pyrochlore composition $\text{Nd}_{1.8}\text{Zr}_{2.2}\text{O}_{7.1}$ to electronic excitations // *Journal of the American Ceramic Society*. – 2024. – Vol. 107, No. 1. – P. 561–575.
14. Yuan K., Jin X., Wang X. Phase stability and microstructure evolution of MgO-ZrO_2 and MgO-6YSZ ceramic fibers // *International Journal of Applied Ceramic Technology*. – 2020. – Vol. 17, No. 5. – P. 2094–2103.
15. Tang Y. et al. He_2^+ irradiation response of structural evolution at different depths of $\text{MgO-Nd}_2(\text{Zr}_{1-x}\text{Ce}_x)_2\text{O}_7$ composite ceramics used for inert matrix fuel // *Ceramics International*. – 2024. – Vol. 50, No. 5. – P. 8238–8248.
16. Nandi C. et al. $\text{Zr}_{0.70}[\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x]_{0.30}\text{O}_{1.85}$ as a potential candidate for inert matrix fuel: Structural and thermo-physical property investigations // *Journal of Nuclear Materials*. – 2018. – Vol. 510. – P. 178–186.
17. Nelson A. T. et al. Effect of composition on thermal conductivity of $\text{MgO-Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ composites for inert matrix materials // *Journal of nuclear materials*. – 2014. – Vol. 444, No. 1–3. – P. 385–392.
18. Lu X. et al. Heavy-ion irradiation effects on $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics bearing complex nuclear waste // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2019. – Vol. 771. – P. 973–979.
19. Ghyngazov S. A. et al. Swift heavy ion induced phase transformations in partially stabilized ZrO_2 // *Radiation Physics and Chemistry*. – 2022. – Vol. 192. – P. 109917.
20. Alin M. et al. Study of the mechanisms of the $\text{t-ZrO}_2 \rightarrow \text{c-ZrO}_2$ type polymorphic transformations in ceramics as a result of irradiation with heavy Xe^{22+} ions // *Solid State Sciences*. – 2022. – Vol. 123. – P. 106791.
21. Schuster B. et al. Response behavior of ZrO_2 under swift heavy ion irradiation with and without external pressure // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2012. – Vol. 277. – P. 45–52.
22. Qing Q. et al. Irradiation response of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ under heavy ions irradiation // *Journal of the European Ceramic Society*. – 2018. – Vol. 38, No. 4. – P. 2068–2073.
23. Kanjilal D. Swift heavy ion-induced modification and track formation in materials // *Current Science*. – 2001. – P. 1560–1566.
24. Kamarou A. et al. Swift heavy ion irradiation of InP: Thermal spike modeling of track formation // *Physical Review B – Condensed Matter and Materials Physics*. – 2006. – Vol. 73, No. 18. – P. 184107.
25. Egeland G. W. et al. Heavy-ion irradiation defect accumulation in ZrN characterized by TEM, GIXRD, nanoindentation, and helium desorption // *Journal of nuclear materials*. – 2013. – Vol. 435, No. 1–3. – P. 77–87.

АУЫР ИОНДАРМЕН ЖОҒАРЫ ТЕМПЕРАТУРАЛЫҚ СӘУЛЕЛЕНДІРУ ЖАҒДАЙЫНДА
ТҰРАҚТАНДЫРЫЛҒАН ЦИРКОНАТ НЕГІЗІНДЕГІ КЕРАМИКАЛАРДЫҢ ҚҰРЫЛЫМДЫҚ
ЗАҚЫМДАНУ МЕХАНИЗМДЕРІН ЗЕРТТЕУ

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, М. Б. Кабиев¹, И. Е. Кенжина^{2,3}, А. У. Толенова³

¹⁾ Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан

²⁾ ҚР Энергетика министрлігі «Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

³⁾ Satbayev University, Алматы, Қазақстан

* Байланыс үшін E-mail: kozlovskiy.a@inp.kz

Бұл жұмыста $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ негізіндегі керамикалардың ауыр иондар Xe^+ сәулелендіру жағдайында радиациялық зақымдану механизмдерін зерттеу бойынша эксперименттік зерттеулердің нәтижелері жан-жақты сипатталған. Зерттелген үлгілердің бір бөлігі тұрақтандырылмаған күйде, ал басқа бөлігі 0,15 М MgO және Y_2O_3 қосымшаларымен тұрақтандырылған. Рентгенофазалық талдау нәтижелері бойынша, бұл қосымшалар құрылымда MgO және $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ түйіршіктері түріндегі қоспа қосындылардың түзілуіне алып келеді. Бұл түйіршіктер дән аралық кеңістікте буферлік қорғаныс қабатын қалыптастырады, оның болуы радиациялық-индукцияланған әлсіреу және жылуфизикалық параметрлердің төмендеу процестеріне төзімділікті арттырады. Кристалдық құрылымдағы құрылымдық кернеулердің жинақталуы нәтижесінде пайда болатын деформациялық бұрмаланулар мен аморфизация процестерінің өзгерістерін зерттеу барысында дифракциялық максимумдардың қарқындылығының өзгерістеріне негізделген әдістер қолданылды. Жоғары дозалы сәулелендіру кезінде бұл екі процестің де зақымдалған қабаттың деградациясына бірдей ықпал ететіні және тұрақтандырушы компоненттердің аморфизация мен деформациялық бұрмалануларды тежеуде оң әсер ететіні анықталды. $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ керамикаларының беріктік және жылуфизикалық параметрлерінің ауыр иондармен сәулелендіру әсерінен өзгеруін талдау көрсеткендей, құрамына MgO және Y_2O_3 тұрақтандырғыш қоспаларын енгізу радиациялық-индукцияланған әлсіреу мен жылуөткізгіштік деградациясына төзімділікті арттырады. Бұл әсер құрылымдық деформациялық бұрмаланулар мен зақымдалған қабаттағы метастабильді қосындылардың жинақталуымен байланысты.

Түйін сөздер: радиациялық зақымданулар, әлсіреу, беріктік қасиеттердің деградациясы, деформациялық бұрмаланулар, ауыр иондар.

STUDY OF STRUCTURAL DAMAGE MECHANISMS IN STABILIZED CERAMICS BASED
ON ZIRCONATES UNDER HIGH-TEMPERATURE IRRADIATION WITH HEAVY IONS

A. L. Kozlovskiy^{1,2,3*}, M. B. Kabiyevev¹, I. E. Kenzhina^{2,3}, A. U. Tolenova³

¹⁾ L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan

²⁾ RSE "Institute of Nuclear Physics" ME RK, Almaty, Kazakhstan

³⁾ Satbayev University, Almaty, Kazakhstan

* E-mail for contacts: kozlovskiy.a@inp.kz

The paper presents a comprehensive description of the results of experimental work related to the study of the mechanisms of radiation damage accumulation during the irradiation with heavy Xe^+ ions of the studied samples of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics in the unstabilized state, and stabilized with 0.15 M MgO and Y_2O_3 , the adding of which according to the data of X-ray phase analysis leads to the formation of impurity inclusions in the structure in the form of MgO and $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ grains, which create a buffer protective layer in the intergranular space, the presence of which leads to an increase in resistance to radiation-induced processes of unstrengthening and reduction of thermophysical parameters. In the course of determining the dependences of changes in strain distortion resulting from the accumulation of structural stresses in the crystal structure and amorphization, which was determined on the basis of changes in the intensity of diffraction maxima, the equally probable influence of both processes at high-dose irradiation on the degradation of the near-surface damaged layer was determined, as well as the positive influence of stabilizing components on the inhibition of amorphization and strain distortion at high-dose irradiation. The analysis of changes in strength and thermophysical parameters of $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ceramics subjected to irradiation by heavy ions has shown that the addition of stabilizing additives in the form of MgO and Y_2O_3 to ceramics composition leads to increased resistance to radiation-induced processes of de-strengthening and thermal conductivity degradation caused by the accumulation of structural deformation distortions and metastable inclusions in the damaged layer.

Keywords: radiation damage, disordering, degradation of strength properties, deformation distortions, heavy ions.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-164-173>

УДК 539.213.26

ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ ВАРИАЦИИ ФАЗОВОГО СОСТАВА КОМПОЗИТНЫХ КЕРАМИК НА УСТОЙЧИВОСТЬ К РАДИАЦИОННЫМ ПОВРЕЖДЕНИЯМ

А. Л. Козловский^{1,2,3}, С. Б. Азамбаев¹, А. М. Абшукирова³

¹⁾ Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

²⁾ РГП «Институт ядерной физики» МЭ РК, Алматы, Казахстан

³⁾ Satbayev University, Алматы, Казахстан

* E-mail для контактов: kozlovskiy.a@inp.kz

В работе представлены результаты исследования влияния вариации фазового состава композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик на сохранение устойчивости прочностных свойств в случае облучения тяжелыми ионами Xe^{23+} (230 МэВ) при флюенсах $10^{11} - 10^{14}$ ион/см². Вариация концентрации компонент была выбрана с учетом возможности получения композитных керамик с различным соотношением фаз: Si_3N_4 , Al_2O_3 , а также $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ и SiO_2 , формирование которых в составе керамик связано с процессами термического разложения Si_3N_4 при высокотемпературном отжиге в кислородосодержащей атмосфере и фазовых трансформаций по типу формирования твердых растворов. Выбор типа ионов для облучения обусловлен возможностями моделирования процессов структурных повреждений, приводящих к разупрочнению поврежденного слоя, сравнимых с воздействием осколков деления ядерного топлива в керамиках – материалах инертных матриц дисперсного ядерного топлива. В ходе проведенных исследований, установлено, что при флюенсах облучения $10^{11} - 10^{12}$ ион/см² структурные изменения, связанные с формированием одиночных изолированных структурно-деформированных включений не приводит к существенным изменениям прочностных характеристик керамик, при этом малые изменения наблюдаемые связаны с деформационными искажениями, накопление которых приводит к дестабилизации поврежденного слоя. В случае более высоких флюенсов облучения (выше 10^{12} ион/см²) для которых характерно формирование эффектов перекрытия дефектных областей в поврежденном слое, наибольшей устойчивостью к разупрочнению обладают керамики $0,4 \text{ Si}_3\text{N}_4 - 0,6 \text{ Al}_2\text{O}_3$, в которых согласно данным рентгенофазового анализа доминирующей фазой является $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$, наличие которой обуславливает большое количество границ зерен, что в свою очередь приводит к дислокационному упрочнению и сдерживанию процессов разупрочнения, связанного с деформационными искажениями поврежденного слоя.

Ключевые слова: композитные керамики, разупрочнение, тяжелые ионы, устойчивость к разупорядочению, радиационная стойкость.

ВВЕДЕНИЕ

Развитие технологических решений в области использования композитных керамик в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива, а также радиационно-стойких материалов, использующихся для длительного хранения и последующего захоронения отработанного ядерного топлива является одним из ключевых и перспективных направлений в ядерной и альтернативной энергетике [1–3]. Расширение потенциала применения новых типов ядерных материалов в реакторах нового поколения, работающих при более высоких температурах, а также необходимость увеличения глубины выгорания ядерного топлива, требует большого внимания не только со стороны исследовательских групп, но и промышленных предприятий и конструкторских бюро, занимающихся разработками для ядерной энергетики. При этом в последние годы большое внимание в данном направлении уделяется поиску оптимальных составов композитных керамик, имеющих в своем составе две и более фазы, наличие которых обуславливает эффект упрочнения, обусловленного наличием различных фаз, которое приводит к формированию межфазных границ, выступающих в данном слу-

чае как сдерживающие барьерные границы для дислокаций, точечных и вакансионных дефектов [5–8]. Формирование подобных эффектов в структуре керамик приводит к сдерживанию диффузии точечных и вакансионных дефектов, возникающих в результате ионизационных эффектов в структуре поврежденного слоя при взаимодействии налетающих ионов с кристаллической структурой облучаемого материала [9, 10]. Наличие межфазных границ, связанное с мультикомпонентностью керамик является одним из наиболее перспективных методов повышения устойчивости керамических материалов как к механическим воздействиям, так и радиационным повреждениям, возникающим в процессе их эксплуатации при использовании их в качестве материалов инертных матриц или материалов длительного хранения ядерного топлива [11, 12]. При этом вариация фазового состава керамик, как правило, зависит от концентрационных зависимостей используемых компонент в составе керамик, а также условий их получения, которые определяют не только вариацию фазового состава, но и размерные эффекты, играющие также немаловажную роль в определении устойчивости материалов к внешним воздействиям [12–14].

Ключевая цель данного исследования заключается в определении влияния вариации фазового состава композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик к механизмам радиационно – стимулированному разупрочнению, связанному со снижением твердости и устойчивости к растрескиванию при механических нагрузках, а также установлению механизмов сдерживания радиационных повреждений за счет эффекта межфазных границ в составе керамик, связанных с изменением соотношения фаз [15–17]. При этом интерес к данному типу керамик обусловлен возможностями создания на их основе материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива, способного выдерживать экстремальные нагрузки в виде высоких температур и больших доз радиации, включая продукты распада ядерного топлива в виде осколков деления, нейтронов и гамма-излучения. Также данные материалы могут рассматриваться как один из перспективных классов материалов, используемых для длительного хранения и последующей утилизации отработанного ядерного топлива, что в свою очередь позволит уменьшить риски возникновения утечек в виду высокой устойчивости данного типа керамик к внешним механическим воздействиям, а также термошокам, возникающим в результате резкого перепада температур [18, 19]. В данном случае возможность вариации соотношения компонент, приводящее к изменению фазового состава керамик позволяет создать высокопрочные радиационно-стойкие керамики, обладающие высокими показателями устойчивости к накоплению радиационных повреждений, а также связанных с ними эффектов деструктивного охрупчивания, приводящего к снижению прочности и устойчивости к растрескиванию. При этом выбор условий облучения в виде воздействия тяжелыми ионами Xe^{23+} позволяет смоделировать процессы воздействия осколков деления ядерного топлива, что в свою очередь позволяет оценить устойчивость данного типа композитных керамик к радиационным повреждениям, а также определить влияние механизмов накопления структурных дефектов на разупрочнение и снижение прочностных характеристик [20]. Ключевым отличием данной работы является определение влияния фазового состава на устойчивость сопротивляемости к процессам разупрочнения приповерхностного поврежденного слоя в зависимости от флюенса облучения тяжелыми ионами Xe^{23+} , а также выявлению наиболее оптимальных составов керамик, обладающих повышенной сопротивляемостью к процессам деградации прочностных характеристик при высокодозном облучении.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В качестве образцов для исследований были выбраны композитные $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамики, полученные с применением метода механохимического твердофазного синтеза, путем смешивания нитрида кремния (Si_3N_4) и оксида алюминия (Al_2O_3) в различных стехиометрических соотношениях вари-

ция которых приводит к изменению фазового состава керамик при их смешивании и последующем термическом отжиге. Навеска образцов для перемалывания проводилась с использованием лабораторных весов Radwag (Radwag Wagi Elektroniczne, Радом, Польша). Вариация соотношения компонент в составе керамик проводилась с шагом 0,1 М. После навески образцов в заданном стехиометрическом соотношении полученные порошки были подвергнуты механохимическому твердофазному синтезу в планетарной мельнице PULVERISETTE 6 (Fritsch, Берлин, Германия). Перемалывание осуществлялось в стакане из карбида вольфрама, в качестве мелющих тел были выбраны шары из карбида вольфрама диаметром 10 мм. Соотношение мелющих тел и перемалываемого объема порошка составляла 3:2, с целью избегания эффектов холодного сваривания порошков, приводящих к прилипанию их к стенкам стакана и к мелющим телам, скорость помола была выбрана 250 об./мин, время помола составляло 30 мин. Использование данных режимов перемалывания позволяет получить однородные по размерам порошки с изотропным распределением компонент в составе. При этом механическое воздействие на перемалываемые порошки приводит к инициализации процессов деформационных искажений и дестабилизации кристаллической структуры порошков, что в результате последующего термического отжига позволяет добиться стимулирования процессов фазовых трансформаций в керамиках при высоких температурах спекания. Термический отжиг образцов осуществлялся в муфельной печи Nabertherm (Nabertherm, Лилиенталь, Германия) при температуре 1500 °С, время отжига составляло 5 часов, скорость нагрева составляла 20 °С/мин. По достижению заданного временного промежутка полученные образцы остывали вместе с печью в течение 24 часов до достижения комнатной температуры, после чего образцы извлекались из печи, прессовались в таблетки диаметром 10 мм для последующих испытаний на радиационные повреждения и механические нагрузки. После запрессовки образцы подвергались термической релаксации деформационных искажений, вызванных прессованием, которая осуществлялась путем отжига образцов в муфельной печи при температуре 450 °С в течение 10 часов.

Для моделирования процессов радиационно-стимулированного разупрочнения, вызванного накоплением радиационных повреждений в приповерхностном слое, был использован метод облучения тяжелыми ионами Xe^{23+} с энергией порядка 230 МэВ (1,7 МэВ/нуклон). Выбор ионов Xe^{23+} с энергией 230 МэВ сопоставимы с осколками деления ядерного топлива в результате ядерных реакций под действием нейтронов. При этом энергетические характеристик выбранных ионов Xe^{23+} сопоставимы с энергетическим диапазоном осколков деления, составляющим 150–250 МэВ. Облучение исследуемых образцов керамик проводилось на ускорителе ДЦ-60, располо-

женного в Астанинском филиале Института ядерной физики МЭ РК. Облучение образцов проводилось в вакууме, с целью избегания эффектов рассеяния ионов в воздухе и потере начальной энергии при соударениях, а также достижения однородности плотности облучения образца по поверхности, для которого использовалась система развертки пучка ионов на площадь $3 \times 3 \text{ см}^2$. Использование данной системы позволяет достигнуть равномерного распределения структурных повреждений по всей площади исследуемых образцов, диаметр которых составлял 10 мм. Облучение образцов проводилось при комнатной температуре, поддержание которой осуществлялось с использованием водоохлаждаемого мишенедержателя. Максимально достижимое значение температуры образца, связанное с термическим разогревом в случае длительного процесса облучения составляло не более 70–100 °C на поверхности, что позволяет исключить внешние термические эффекты на процессы структурного разупорядочения, приводящие к разупрочнению и снижению устойчивости керамик к внешним механическим воздействиям.

Оценка изменения прочностных характеристик исследуемых керамик с целью выявления влияния фазового состава керамик на устойчивость к внешним воздействиям, а также влиянию накопленных структурных повреждений, вызванных облучением, была проведена с применением двух методов: метода индентирования и метода трехточечного изгиба. Метод индентирования использовался для определения значений твердости исследуемых керамик в зависимости от вариации фазового состава, а также изменений, вызванных облучением тяжелыми ионами приповерхностного слоя. Индентирование проводилось на микротвердомере Durolin M1 (Metkon, Бурса, Турция), в качестве индентера использовалась пирамида Виккерса. Нагрузка на индентер при испытаниях составляла порядка 100 Н, при этом время нажатия на образец после наведения и отцентровки параметров составляло 15 секунд при постоянной нагрузке, по истечению которых измерялся отпечаток индентера с целью определения значений твердости. Эксперименты по определению значений твердости исследуемых образцов керамик были проведены в виде серийных испытаний, включающих в себя не менее 10–15 последовательных измерений с различных участков, что позволило определить погрешность измерений, а также величину стандартного отклонения.

Определение эффекта разупрочнения (ΔHV), связанного со снижением твердости облученных образцов керамик в сравнении с исходными значениями твердости было определено с применением формулы (1):

$$\Delta HV = \frac{HV_{\text{исходный}} - HV_{\text{облученный}}}{HV_{\text{исходный}}} \cdot 100 \%, \quad (1)$$

где $HV_{\text{исходный}}$ и $HV_{\text{облученный}}$ – значения твердости ке-

рамик в исходном состоянии и после облучения. Нормировка на 100% данной величины ΔHV позволяет оценить степень изменения твердости при накоплении структурных повреждений в случае изменения флюенса облучения, а также определить влияние фазового состава керамик на устойчивость к радиационно – стимулированному разупрочнению керамик.

Испытания на трехточечный изгиб осуществлялись путем воздействия на образцы керамик специального индентера, результатом воздействия которого являлось определение устойчивости к растрескиванию при механической нагрузке на образец. Испытания проводились на универсальной одноколонной электромеханической испытательной машине LFM-L 10kN (Walter + Bai AG, Лёнинген, Швейцария). Эксперименты по определению устойчивости к растрескиванию были осуществлены в виде серийных испытаний, включающих в себя не менее 10 образцов, подвергавшихся испытаниям на трехточечный изгиб, что позволило определить погрешность измерений, а также величину стандартного отклонения. Скорость нагрузки на образец составляла порядка 0,2 мм/мин. Определение параметра разупрочнения при внешних механических воздействиях, выражающего устойчивость керамик к растрескиванию при испытаниях на трехточечный изгиб было осуществлено путем сравнительного анализа значений максимальной нагрузки для исходных образцов и после облучения. Нормировка на 100% позволила определить кинетику деградации материала при накоплении структурных повреждений, вызванных облучением. Определение степени разупрочнения керамик в зависимости от флюенса облучения является стандартным методом определения деградации прочностных свойств материалов, которая заключается в сравнительном анализе изменений величин в исходном состоянии и после внешних воздействий, в данном случае облучения тяжелыми ионами. Выражение полученных значений в процентном соотношении позволяет оценить насколько велико изменение прочностных параметров в сравнении с исходными значениями в зависимости от флюенса облучения.

Выбор измерений величин твердости и прочности на изгиб в качестве основных параметров определяющих прочностные свойства керамик основан на том, что данные величины наиболее полно характеризуют деградацию прочностных свойств, связанную с изменениями структурных параметров, накоплением в поврежденном слое метастабильных включений, а также, что немаловажно позволяют сравнивать наблюдаемые изменения прочностных характеристик с другими типами керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В таблице 1 приведены результаты рентгенофазового анализа исследуемых образцов композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, а также взаимосвязь меж-

ду изменениями фазового состава керамик и значениями твердости образцов, измененным методом индентирования, а также результаты оценки испытаний керамик на трехточечный изгиб. Определение фазового состава керамик проводилось с применением метода оценки весовых вкладов каждой фазы, установление которых осуществлялось путем определения площадей всех дифракционных пиков для каждой установленной фазы с последующим определением их весового вклада в общую дифрактограмму. Данный метод определения является стандартным методом определения фазового состава, точность которого составляет порядка 0,1 вес.%. Детальное изучение процессов фазообразования в $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамиках при вариации соотношения компонент в составе в широком диапазоне изменений стехиометрического соотношения представлено в работе [21], в которой были определены основные фазовые трансформации в составе керамик, связанные с процессами термического разложения (окисления) $\text{Si}_3\text{N}_4 \rightarrow \text{Si}_3\text{N}_4(\text{SiO}_2)$, возникающих при термическом отжиге нитрида кремния в атмосфере воздуха, формирования включений в виде гексагональной фазы SiAlON, а также формировании орторомбической фазы $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$, наличие которой приводит к упрочнению и повышению устойчивости керамик к внешним механическим воздействиям, как это следует из данных твердости и устойчивости к растрескиванию, представленных в таблице 1. При этом следует отметить, что увеличение весового вклада фазы $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ с последующим вытеснением из состава керамик фаз Si_3N_4 и SiO_2 в случае концентраций Al_2O_3 выше 0,7 М приводит к снижению прочностных характеристик, из чего можно сделать вывод о том, что немаловажную роль в устойчивости керамик к механическим нагрузкам оказывает наличие нескольких фаз в составе. Данный эффект может быть обусловлен упрочнением, связанным с наличием межфазных границ, которые в случае механических

воздействий, являются сдерживающими барьерами для распространения микротрещин, а также миграции дислокаций, накопление которых вблизи границ зерен приводит к увеличению устойчивости керамик к внешним воздействиям. При этом как было показано в работе [21] в случае малых концентраций оксида алюминия в структуре керамик происходит формирование гексагональной фазы SiAlON, наличие которой обусловлено эффектами структурных изменений, связанных с процессами замещения и фазообразования в керамиках при их термическом спекании. В случае концентраций оксида алюминия выше 0,2 М в составе керамик происходит формирование фазы твердого раствора типа $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$, формирование которой связано с фазовыми трансформациями возникающими при окислении нитрида кремния и накоплении оксида кремния, взаимодействующего с оксидом алюминия при термическом спекании. В случае концентраций оксида алюминия выше 0,3 М в структуре керамик фиксируется наличие ромбоэдрической фазы Al_2O_3 , увеличение вклада которой происходит пропорционально концентрации исходной компоненты в составе керамик. Согласно данным оценки прочностных характеристик, формирование в составе фазы $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ приводит к увеличению параметров твердости и устойчивости к растрескиванию, величины которых увеличиваются примерно в 1,5–1,7 раза для данных твердости, и примерно на 20–30% для данных устойчивости к растрескиванию. При этом следует отметить, как было показано в работах [21, 22] изменение прочностных характеристик в керамиках имеет прямую взаимосвязь с наличием межфазных границ, обусловленных присутствием в составе керамик фаз нитрида кремния и оксида кремния, наличие которых приводит как к возникновению эффекта межфазного упрочнения, так и дисперсионного упрочнения, связанного с изменением размеров зерен для каждой фазы, формируемой в составе керамик.

Таблица 1. Данные рентгенофазового анализа и прочностных характеристик

Содержание компоненты Al_2O_3 , М	Тип фазы					Твердость, МПа	Устойчивость к растрескиванию при трехточечном изгибе, МПа
	Si_3N_4 (PDF-01-071-6479) – гексагональный тип	SiO_2 (PDF-01-074-9378) – тетрагональный тип	SiAlON (PDF-01-078-6165) – гексагональный тип	$\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ (PDF-01-074-0274) – орторомбический тип	Al_2O_3 (PDF-00-046-1212) – ромбоэдрический тип		
0	88,3	11,7	–	–	–	626±11	763±14
0,1	68,8	31,2	8,4	–	–	683±15	779±13
0,2	65,1	11,6	–	23,3	–	844±23	788±11
0,3	48,7	9,3	–	31	11	930±21	804±12
0,4	37,7	7,3	–	38	17	1100±34	823±15
0,5	23	10	–	34,5	32,5	1208±31	892±21
0,6	9	6,8	–	43,4	40,8	1452±35	935±23
0,7	5,6	4,2	–	35,7	54,5	1497±24	954±24
0,8	–	–	–	42,5	57,5	1127±32	890±21
0,9	–	–	–	19,8	80,2	1019±25	788±16
1	–	–	–	–	100	608±14	719±15

Определение влияния облучения тяжелыми ионами на изменение механических параметров исследуемых композитных керамик в зависимости от соотношения компонент проводилось путем вычисления параметров твердости (см. данные на рисунке 1а) и прочности на изгиб (см. данные на рисунке 1б). Данные представлены в виде зависимостей изменения параметров от флюенса облучения, отражающие деградацию прочностных параметров при увеличении флюенса облучения, и как следствие, плотности структурных повреждений, вызванных взаимодействием тяжелых ионов с кристаллической структурой. В случае облучения тяжелыми ионами при их взаимодействии с кристаллической решеткой при высоких энергиях налетающих частиц, доминирующую роль в структурных изменениях играют ионизационные потери ионов, связанные с взаимодействием ионов с электронной подсистемой керамик, результатом которых является изменение электронной плотности вдоль траектории движения ионов в материале на большей части глубины пробега ионов в поврежденном слое. При этом следует отметить, что в случае высоких энергий налетающих ионов (при энергии выше 100 МэВ) размеры поврежденных или структурно-измененных областей, возникающих вдоль траектории движения ионов в материале поврежденного слоя составляют порядка 1–10 нм (согласно теоретическим оценкам), имеющих явно выраженную анизотропию распределения от центральной части к краю поврежденного слоя [23, 24]. С учетом хорошо известной «модели термических пиков» [25, 26], включающей в себя возникновение термически – нестабильных областей вдоль траектории движения ионов, в которых за весьма короткие времена (порядка 10^{-11} – 10^{-13} с) возникает резкое увеличение температуры, результатом которого является дестабилизация кристаллической структуры в малом изолированном объеме. Формирование подобных включений в поврежденном слое приводит к деструктуризации поврежденного слоя, однако малые размеры структурно-измененных областей при малых флюенсах облучения могут приводить к тому, что данные области располагаются на достаточно большом расстоянии друг от друга в силу хаотичной природы взаимодействия ионов с материалом мишени. В результате чего, при высокой степени структурного упорядочения, а также сопротивляемости керамик к деформационным искажениям, деградация механических характеристик может не наблюдаться или величина отклонения механических характеристик незначительна в сравнении с начальными значениями (менее 0,1–0,5%). Наблюдаемые малые изменения величин твердости и прочности на изгиб имеют хорошее согласие с изложенным выше объяснением формирования структурно-измененных областей в поврежденном слое при флюенсах облучения ниже 10^{12} ион/см², для которых согласно ряду экспериментальных работ [23, 24], формирование структурно-измененных областей при размерах порядка 1–10 нм наблюдается сохранение эффекта изолиро-

ванности данных областей в поврежденном слое. При этом в случае композитных керамик, изменение соотношения компонент в которых приводит к увеличению прочностных свойств за счет эффекта наличия межфазных границ, сопротивляемость разупрочнению, вызванному облучением более высока. При этом следует отметить, что эффект увеличения сопротивляемости к разупрочнению при изменении соотношения компонент в составе керамик, и как следствие, изменений, вызванных вариацией фазового состава керамик в случае малых флюенсов облучения не особо проявляется, в виду изолированности структурно-измененных областей, а также их малой плотности в поврежденном слое, изменение которой напрямую зависит от флюенса облучения. При малых флюенсах облучения изолированность структурно-измененных областей в совокупности с малыми размерами данных областей сдерживается структурными особенностями, изменение которых обусловлено наличием межфазных границ, а также примесных включений, что в совокупности дает возможность повышения сопротивляемости к разупрочнению за счет сдерживания миграции дефектов в поврежденном слое, что в свою очередь приводит к замедлению процессов образования комплексных дефектов, которые способны оказать негативное влияние на эффекты разупрочнения поврежденного слоя. При этом наблюдаемое снижение механических параметров при увеличении флюенса с 10^{11} до $5 \cdot 10^{12}$ ион/см² свидетельствуют о накопительном эффекте. В данном случае увеличение флюенса облучения при подобных размерах структурно-измененных областей может привести к возникновению эффекта перекрытия данных областей. Наличие эффекта перекрытия структурно-изолированных повреждений приводит к росту дестабилизирующих областей в поврежденном слое, что как следствие приводит к снижению устойчивости прочностных характеристик к радиационным повреждениям, которое выражается в уменьшении значений твердости и устойчивости к растрескиванию (прочности на изгиб). При этом следует отметить, что тренды снижения для обоих измеряемых характеристик имеют схожий характер, что свидетельствует об едином характере деградации прочностных свойств. В данном случае ухудшение прочностных свойств керамик при увеличении флюенса облучения выше 10^{12} ион/см² наложение структурно-измененных областей, а также повторное попадание ионов в ранее поврежденный слой приводит к ускорению дестабилизирующих процессов, связанных с образованием кислородных вакансий и точечных дефектов, миграция которых приводит к увеличению концентрации деформационных искажений в поврежденном слое. Рост деформационных искажений приводит к формированию метастабильных включений, наличие которых сопровождается увеличением объемного распухания, и как следствие, росту деформации поврежденного слоя, снижающего устойчивость к внешним механическим воздействиям, в частности, механических нагрузках.

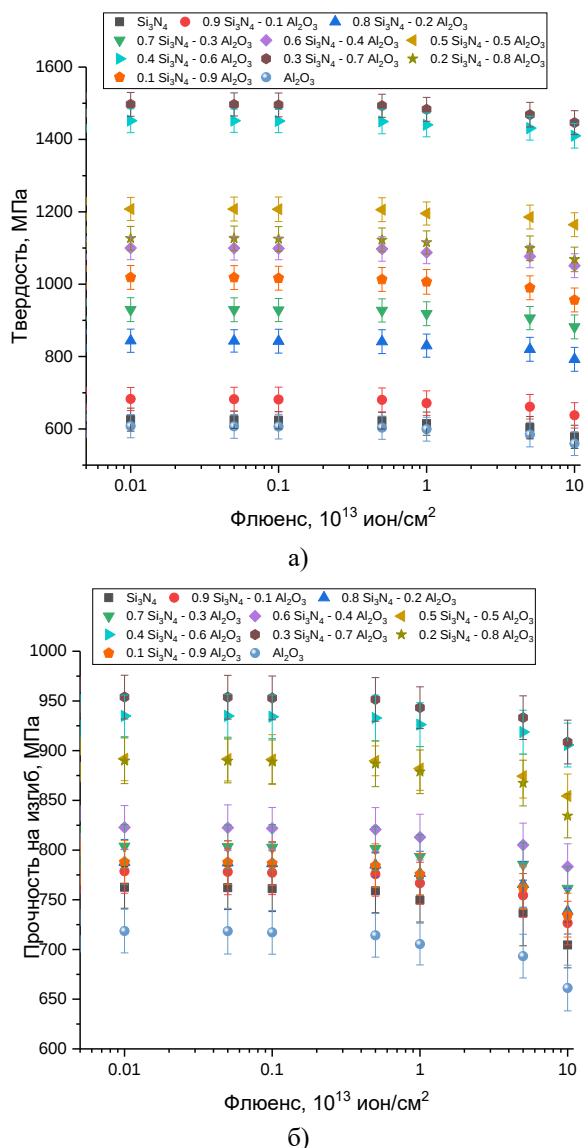


Рисунок 1. Результаты оценки изменения механических характеристик керамик в зависимости от флюенса облучения тяжелыми ионами Xe^{23+} , отражающие деградацию, вызванную процессами разупрочнения: результаты изменения твердости исследуемых композитных керамик (а) и результаты изменения прочности на изгиб исследуемых композитных керамик (б)

На рисунке 2 приведены результаты оценки изменений прочностных параметров, связанных с накоплением эффектов разупрочнения и деградации твердости и прочности на изгиб в зависимости от флюенса облучения. Данные приведены в виде зависимостей степени деградации прочностных параметров в процентном соотношении, отражающим, насколько деградировал приповерхностный слой при изменении флюенса облучения в сравнении с исходными значениями. Общий тренд наблюдаемых изменений можно разделить на два типа изменений, имеющих различный тип изменений, связанных как со структурными параметрами, так и эффектами изменения

флюенса облучения. Первый тип наблюдаемый изменений степени деградации обусловлен эффектами накопления структурных повреждений в приповерхностном слое, который выражается в экспоненциальном росте степени деградации, наиболее проявленном при флюенсах выше $5 \cdot 10^{12}$ ион/см². Данный тип изменений обусловлен формированием эффекта перекрытия деформированных включений, возникающих в результате взаимодействия тяжелых ионов с кристаллической структурой, а также связанными с ними деформационными искажениями и ионизационными эффектами. Второй тип наблюдаемых изменений связан с изменением фазового состава керамик, который связан с вариацией соотношения компонент в составе керамик.

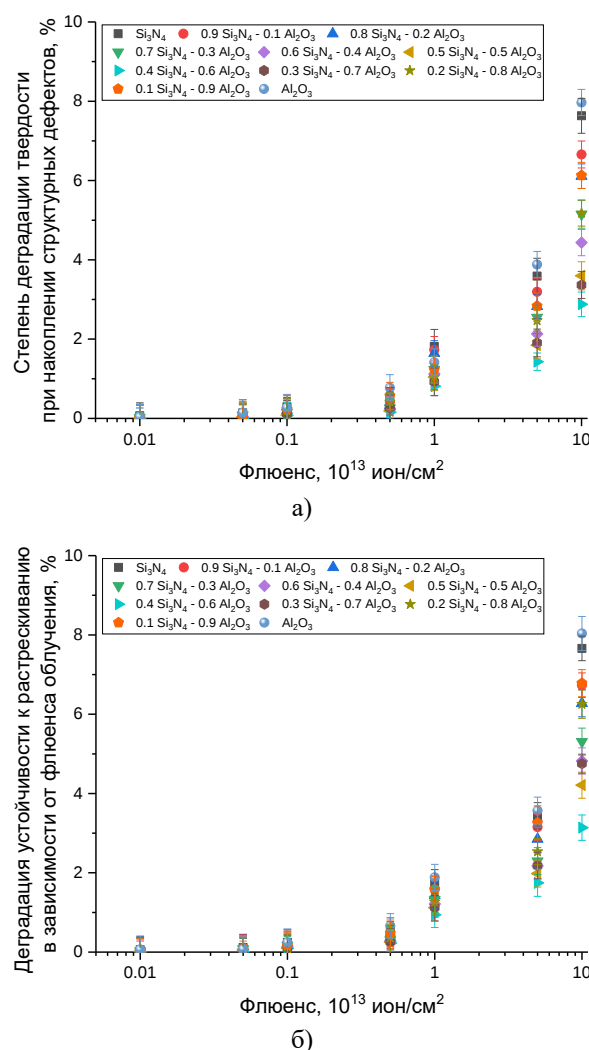


Рисунок 2. Результаты оценки деградации прочностных характеристик композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик при изменении флюенса облучения: результаты снижения твердости керамик при накоплении структурных повреждений (а) и результаты снижения прочности на изгиб, отражающие устойчивость к растрескиванию керамик при накоплении структурных повреждений (б)

В данном случае наблюдаемые изменения степени деградации свидетельствуют о положительном влиянии эффекта вариации фазового состава керамик на повышение устойчивости к радиационно-стимулированным эффектам разупрочнения, возникающим в результате взаимодействия налетающих ионов с кристаллической структурой керамик.

На рисунке 3 приведены результаты сравнительного анализа изменения степени деградации прочностных параметров исследуемых композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик при изменении соотношения компонент в составе, отражающие эффект упрочнения и повышения сопротивляемости к разупрочнению при облучении тяжелыми ионами. Данные представлены в виде двух сравнительных зависимостей для флюенса облучения 10^{12} ион/см², характерных для граничного эффекта, при котором изолированность структурно – измененных областей минимальна, но при этом эффектам перекрытия не наблюдается и для флюенса облучения 10^{14} ион/см², характерного для глубокого перекрытия дефектных включений в поврежденном слое.

Сравнительный анализ изменений степени деградации прочностных параметров в зависимости от вариации соотношения компонент в составе керамик, обуславливающий изменение фазового состава, связанного с формированием фазы $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ в составе керамик при концентрациях Al_2O_3 выше 0,2 М и последующем увеличении ее весового вклада в составе свидетельствует о двухэтапном характере повышения сопротивляемости к разупрочнению и деградации прочностных свойств. В данном случае при концентрациях Al_2O_3 равных 0,2–0,6 М наблюдаемое увеличение устойчивости к разупрочнению, как в случае малых флюенсов облучения так и в случае больших флюенсов, обусловлено формированием в структуре большого количества межфазных границ, наличие которых обусловлено фазовым составом керамик, в составе которых присутствуют фазы $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$, Si_3N_4 , SiO_2 , Al_2O_3 . Подобная мультикомпонентность фазового состава композитных керамик приводит к сдерживанию механизмов миграции точечных и вакансионных дефектов в поврежденном слое, в результате которого происходит увеличение сопротивляемости керамик к деградации. При этом наиболее оптимальным составом керамик, обладающим наиболее высокими показателями устойчивости к внешним воздействиям, а также процессам разупрочнения при накоплении структурных повреждений, является соотношение 0,4 Si_3N_4 –0,6 Al_2O_3 при котором содержание фазы $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ составляет порядка 43 вес.% в составе.

Следует также отметить, что при малых флюенсах облучения (менее 10^{12} ион/см²) эффект влияния фазового состава менее выражен в изменении увеличения устойчивости к упрочнению в виду того, что образующиеся изолированные структурно-измененные области не взаимодействуют друг с другом, в ре-

зультате чего, образующиеся точечные и вакансионные дефекты сдерживаются в малом измененном объеме. В случае эффекта перекрытия, характерного для флюенсов облучения выше 10^{12} ион/см² наличие мультикомпонентного состава керамик приводит к более выраженным эффектами сдерживания эффектов разупрочнения (разница в изменениях степени деградации составляет порядка 2,7–2,8 раз в сравнении с одно- и двухфазными керамикami).

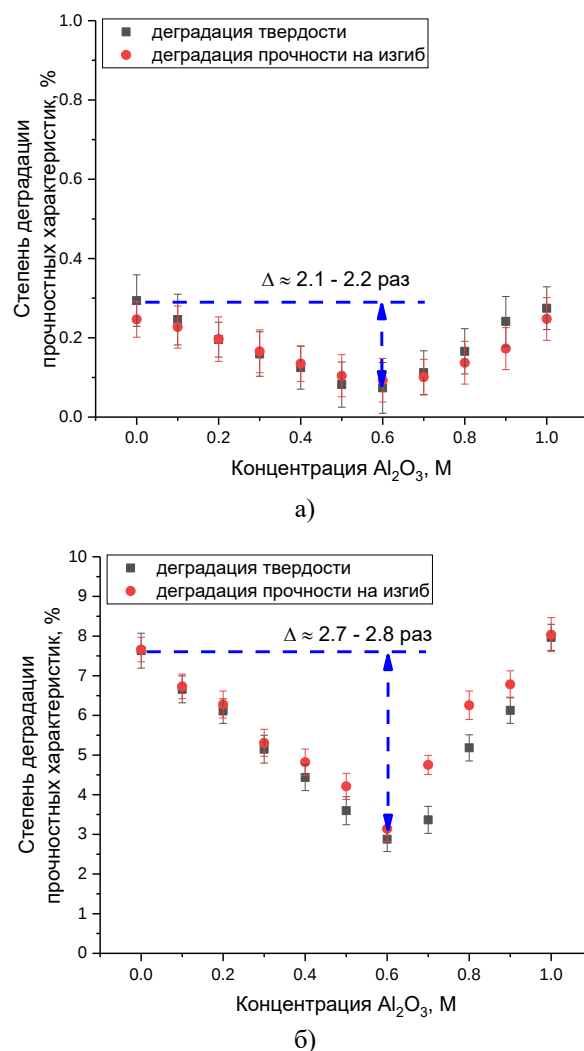


Рисунок 3. Результаты сравнительного анализа изменения степени деградации прочностных параметров в зависимости от вариации соотношения компонент в составе $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик для случаев изолированных структурно-измененных областей (а) при флюенсе облучения 10^{12} ион/см² и при глубоком перекрытии дефектных областей (б) при флюенсе облучения 10^{14} ион/см² (пунктирными линиями обозначен сравнительный анализ изменений величин степени деградации прочностных параметров в зависимости от фазового состава керамик при различных флюенсах облучения)

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе проведенных исследований были определены следующие зависимости, отражающие влияние облучения тяжелыми ионами на устойчивость прочностных свойств композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4-x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик в случае вариации флюенса облучения. Использование в качестве исследуемых образцов $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4-x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик при вариации изменения соотношения компонент в составе позволяет получить композитные керамики с различным соотношением фаз (различными весовыми вкладами), изменение которых определяет не только прочностные характеристики, но и устойчивость к радиационным повреждениям, вызванным облучением тяжелыми ионами. Согласно проведенным исследованиям было определено, что наиболее значимые изменения прочностных параметров, снижение которых свидетельствует о процессах деструктивного разупрочнения наблюдаются при флюенсах облучения выше 10^{12} ион/см². При этом наблюдаемые изменения разупрочнения при данных флюенсах облучения имеют хорошее согласие с ранее проведенными исследованиями и экспериментальными данными, свидетельствующими о негативном влиянии эффекта перекрытия дефектных включений в поврежденном слое при высоких флюенсах.

На основе полученных данных зависимостей изменения прочностных параметров композитных $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4-x\text{Al}_2\text{O}_3$ керамик определено, что наиболее устойчивыми керамиками к радиационно – стимулированным процессам разупрочнения являются $0,4 \text{ Si}_3\text{N}_4 - 0,6 \text{ Al}_2\text{O}_3$ керамики, в составе которых доминирует фаза $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ (весовой вклад более 43 вес.%). При этом определено, что в случае высокодозного облучения наличие мультикомпонентного состава приводит к более выраженному сдерживанию эффектов разупрочнения, чем в случае одно- или двухфазных керамик, деградация которых имеет прямую зависимость от вариации весового вклада каждой фазы в составе. Наблюдаемый эффект упрочнения в данном случае объясняется наличием межфазных границ, которое приводит к увеличению сопротивляемости к разупрочнению за счет замедления процессов миграции точечных и вакансионных дефектов в поврежденном слое, наиболее проявленном при высокодозном облучении.

Исследование финансируется Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (No. BR21882237).

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

- Geringer J. W. et al. Codes and standards for ceramic composite core materials for High Temperature Reactor applications // Nuclear Engineering and Design. – 2023. – Vol. 405. – P. 112158.
- Sadiq I., Asim Ali S., Ahmad T. Advanced Hybrid Ceramics for Nuclear and Hydrogen Energy Applications // Chemistry Select. – 2023. – Vol. 8, No. 27. – P. e202300837.
- Hamilton S. et al. Diffusion study of uranium mononitride/zirconium carbide composite for space nuclear propulsion // Journal of Nuclear Materials. – 2023. – Vol. 583. – P. 154535.
- Evarts J. S. et al. Ceramic–Metal (Cermets) Composites: A Review of Key Properties and Synthesis Methods Focused on Nuclear Waste Immobilization // Industrial & Engineering Chemistry Research. – 2024. – Vol. 63, No. 14. – P. 6003–6023.
- Bao W. et al. Evolution of structures and internal stress of ZrC–SiC composite under He ion irradiation and post-annealing // Materials Characterization. – 2024. – Vol. 207. – P. 113515.
- Woolstenhulme N. et al. Nuclear fuels for transient test reactors // Annals of Nuclear Energy. – 2024. – Vol. 204. – P. 110519.
- Tang Y. et al. He²⁺ irradiation response of structural evolution at different depths of MgO–Nd₂(Zr_{1-x}Ce_x)₂O₇ composite ceramics used for inert matrix fuel // Ceramics International. – 2024. – Vol. 50, No. 5. – P. 8238–8248.
- Hannachi E. et al. Synthesis, characterization, and performance assessment of new composite ceramics towards radiation shielding applications // Journal of Alloys and Compounds. – 2022. – Vol. 899. – P. 163173.
- Simeone D. et al. Characterization of radiation damage in ceramics: Old challenge new issues? // Journal of Materials Research. – 2015. – Vol. 30, No. 9. – P. 1495–1515.
- Katoh Y. et al. Radiation-tolerant joining technologies for silicon carbide ceramics and composites // Journal of Nuclear Materials. – 2014. – Vol. 448, No. 1–3. – P. 497–511.
- Schmidt S. et al. Advanced ceramic matrix composite materials for current and future propulsion technology applications // Acta Astronautica. – 2004. – Vol. 55, No. 3–9. – P. 409–420.
- Karadimas G., Salonitis K. Ceramic matrix composites for aero engine applications – a review // Applied Sciences. – 2023. – Vol. 13, No. 5. – P. 3017.
- Golovkina L. S. et al. Spark Plasma Sintering of fine-grain ceramic-metal composites based on garnet-structure oxide Y₂5Nd0.5Al5O₁₂ for inert matrix fuel // Materials Chemistry and Physics. – 2018. – Vol. 214. – P. 516–526.
- Medvedev P. G. et al. Dual phase MgO–ZrO₂ ceramics for use in LWR inert matrix fuel // Journal of Nuclear Materials. – 2005. – Vol. 342, No. 1–3. – P. 48–62.
- Bai X. et al. Sintering mechanisms of Al₂O₃-based composite ceramic tools having 25% Si₃N₄ additions // International Journal of Refractory Metals and Hard Materials. – 2018. – Vol. 73. – P. 132–138.
- Bai X. et al. Fabrication and characterization of Si₃N₄ reinforced Al₂O₃-based ceramic tool materials // Ceramics International. – 2015. – Vol. 41, No. 10. – P. 12798–12804.
- ndreev P. V. et al. Physical and Mechanical Properties of Ceramics Based on Si₃N₄ of Various Dispersion with 3% Y₂O₃–Al₂O₃ // Inorganic Materials: Applied Research. – 2024. – Vol. 15, No. 2. – P. 470–479.
- Jeong K. et al. Fabrication of Si₃N₄ ceramics by post-reaction sintering using Si–Y₂O₃–Al₂O₃ nanocomposite particles prepared by mechanical treatment // Ceramics

- International. – 2016. – Vol. 42, No. 10. – P. 11554–11561.
19. Lee C. S., Zhang X. F., Thomas G. Novel joining of dissimilar ceramics in the Si_3N_4 – Al_2O_3 system using polytypoid functional gradients // *Acta Materialia*. – 2001. – Vol. 49, No. 18. – P. 3775–3780.
20. Yudinsev S. V., Ojovan M. I., Malkovsky V. I. Thermal Effects and Glass Crystallization in Composite Matrices for Immobilization of the Rare-Earth Element–Minor Actinide Fraction of High-Level Radioactive Waste // *Journal of Composites Science*. – 2024. – Vol. 8, No. 2. – P. 70.
21. Borgekov D. B. et al. Effect of Phase Composition Variation of Oxy-Nitride Composite Ceramics on Heat Resistance and Preservation of Strength Parameters // *Crystals*. – 2024. – Vol. 14, No. 8. – P. 744.
22. Borgekov D. B. et al. The effect of oxygen vacancies on the optical and thermophysical properties of $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4$ – $x\text{Al}_2\text{O}_3$ ceramics // *Optical Materials*. – 2024. – Vol. 157. – P. 116056.
23. Rymzhanov R. A. et al. Overlap of swift heavy ion tracks in Al_2O_3 // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2018. – Vol. 435. – P. 121–125.
24. Kanjilal D. Swift heavy ion-induced modification and track formation in materials // *Current Science*. – 2001. – P. 1560–1566.
25. Toulemonde M. et al. Nanometric transformation of the matter by short and intense electronic excitation: Experimental data versus inelastic thermal spike model // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2012. – Vol. 277. – P. 28–39.
26. Amirkhanov I. V. et al. The use of a thermal spike model for temperature calculation in two-layer structures along the projective track of a high-energy heavy ion // *Physics of Particles and Nuclei Letters*. – 2006. – Vol. 3. – P. 320–326.

КОМПОЗИТТІК КЕРАМИКАЛАРДЫҢ ФАЗАЛЫҚ ҚҰРАМЫНЫҢ ӨЗГЕРУІНІҢ РАДИАЦИЯЛЫҚ ЗАҚЫМДАРҒА ТӨЗІМДІЛІГІНЕ ӘСЕРІН ЗЕРТТЕУ

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, С. Б. Азамбаев¹, А. М. Абшукирова³

¹⁾ Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан

²⁾ ҚР Энергетика министрлігі «Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

³⁾ Satbayev University, Алматы, Қазақстан

* Байланыс үшін e-mail: kozlovskiy.a@inp.kz

Бұл жұмыста ауыр He^{23+} иондарымен (230 МэВ) 10^{11} – 10^{14} ион/см² флюенстерінде сәулелену кезінде $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4$ – $x\text{Al}_2\text{O}_3$ композиттік керамикасының беріктік қасиеттерінің тұрақтылығын сақтау нәтижелері ұсынылған. Компоненттердің концентрациясын өзгерту арқылы Si_3N_4 , Al_2O_3 сондай-ақ $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ және SiO_2 фазаларының әртүрлі арақатынастағы композиттерін алу мүмкіндігі қарастырылды. Бұл фазалар жоғары температуралық күйдіру кезінде Si_3N_4 -тің оттегі бар атмосферада термиялық ыдырауы және фазалық трансформациялар (қатты ерітінділердің түзілуі) нәтижесінде қалыптасады. Сәулелену үшін ион түрін таңдау құрылымдық зақымдану процестерін, атап айтқанда, ядролық отынның бөліну өнімдерінің инертті матрицалы дисперстік ядролық отын материалдарындағы әсеріне ұқсас зақымдану түрлерін модельдеуге бағытталған. Зерттеулер нәтижесінде, 10^{11} – 10^{12} ион/см² флюенстерінде сәулелену кезінде құрылымдық өзгерістер, яғни окшауланған құрылымдық-деформацияланған қосылыстардың қалыптасуы, композиттік керамикалардың беріктік сипаттамаларына айтарлықтай әсер етпейтіні анықталды. Алайда, аздаған өзгерістер деформациялық бұрмалаулардың жинақталуына байланысты, бұл зақымдалған қабаттың тұрақсыздығына алып келеді. Жоғары флюенстерде (10^{12} ион/см² жоғары), яғни зақымдалған қабаттағы ақаулардың қабаттасу эффекттері байқалған жағдайда, рентгенофазалық талдау мәліметтері бойынша $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ фазасы басым $0,4 \text{ Si}_3\text{N}_4$ – $0,6 \text{ Al}_2\text{O}_3$ құрамындағы керамикалар ең жоғары тұрақтылық көрсеткен. Бұл фаза көп мөлшерде дән шекараларының болуын қамтамасыз етіп, дислокациялық беріктенуге ықпал етеді және зақымдалған қабаттың деформациялық бұрмаланулармен байланысты әлсіреу процестерін тежейді.

Түйін сөздер: композиттік керамика, беріктіктің төмендеуі, ауыр иондар, құрылымдық ретсіздікке төзімділік, радиациялық төзімділік.

STUDY OF THE INFLUENCE OF VARIATION OF PHASE COMPOSITION
OF COMPOSITE CERAMICS ON RESISTANCE TO RADIATION DAMAGE

A. L. Kozlovskiy^{1,2,3*}, S. B. Azambayev¹, A. M. Abshukirova³

¹⁾ *L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan*

²⁾ *RSE "Institute of Nuclear Physics" ME RK, Almaty, Kazakhstan*

³⁾ *Satbayev University, Almaty, Kazakhstan*

* E-mail for contacts: kozlovskiy.a@inp.kz

The paper presents the results of investigation of the influence of the variation of the phase composition of composite $(1-x)\text{Si}_3\text{N}_4 - x\text{Al}_2\text{O}_3$ ceramics on the stability of strength properties in the case of irradiation with heavy ions Xe^{23+} (230 MeV) at fluences $10^{11}-10^{14}$ ions/cm². The variation of the component concentration was chosen taking into account the possibility of obtaining composite ceramics with different phase ratio: Si_3N_4 , Al_2O_3 , as well as $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ and SiO_2 , the formation of which in the composition of ceramics is associated with the processes of thermal decomposition of Si_3N_4 during high-temperature annealing in an oxygen-containing atmosphere and phase transformations by the type of solid solution formation. The choice of the type of ions for irradiation is conditioned by the possibilities of simulation of structural damage processes leading to unstrengthening of the damaged layer, comparable to the impact of nuclear fuel fission fragments in ceramics – materials of inert matrices of dispersed nuclear fuel. In the course of the conducted studies, it was established that at irradiation fluences of $10^{11}-10^{12}$ ion/cm² structural changes associated with the formation of single isolated structurally deformed inclusions do not lead to significant changes in the strength characteristics of ceramics, while small changes observed are associated with deformation distortions, the accumulation of which leads to destabilization of the damaged layer. In the case of higher irradiation fluences (above 10^{12} ions/cm²), which are characterized by the formation of the effects of overlapping defect regions in the damaged layer, the ceramics of 0,4 $\text{Si}_3\text{N}_4 - 0,6 \text{Al}_2\text{O}_3$, in which, according to X-ray phase analysis data, the dominant phase is $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$, the presence of which causes a large number of grain boundaries, which in turn leads to dislocation hardening and restraint of the disordering processes associated with deformation distortions of the damaged layer.

Keywords: *composite ceramics, disordering, heavy ions, disorder resistance, radiation resistance.*

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-174-180>

УДК 544.6

СИНТЕЗ MXENE И ПРИМЕНЕНИЕ В РОЛИ ЭЛЕКТРОДНОГО МАТЕРИАЛА ДЛЯ СУПЕРКОНДЕНСАТОРОВ

**А. М. Алиярова³, М. Т. Джусамбаев¹, К. Аскарулы^{1,2,3*}, С. Азат¹,
Ш. Султахан¹, К. Шакенов¹, У. Е. Жантукеев¹, Ж. Липу¹**

¹⁾ *Satbayev University, Алматы, Казахстан*

²⁾ *ТОО «Инженерно-научный хаб», Алматы, Казахстан*

³⁾ *Алматинский университет энергетики и связи имени Г. Даукеева, Алматы, Казахстан*

* E-mail для контактов: k.askaruly@gmail.com

Статья посвящена исследованию процессов получения MXene и их применению в качестве электродов для суперконденсаторов. MXene представляют собой двумерные наноматериалы, обладающие уникальными электрохимическими свойствами, такими как высокая проводимость и большая поверхность. Были исследованы структура и физико-химические свойства полученных MXene с использованием методов анализа, таких как рентгеновская дифракция, сканирующая электронная микроскопия и спектроскопия. Электрохимическая активность MXene была изучена в контексте их применения в суперконденсаторах. Исследованы параметры заряда/разряда, циклическая стабильность и энергетическая плотность суперконденсаторов с MXene-электродами. Результаты исследования подтверждают потенциал MXene в качестве эффективных электродов для суперконденсаторов. Полученные данные указывают на быструю скорость заряда/разряда MXene-электродов, что делает их перспективными кандидатами для использования в энергоемких приложениях. Эта работа способствует лучшему пониманию процессов получения MXene и их электрохимических характеристик, открывая новые горизонты для разработки усовершенствованных суперконденсаторов с повышенной производительностью и долговечностью.

Ключевые слова: суперконденсатор, MXene, энергия, синтез, заряд-разряд.

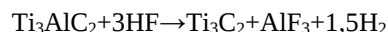
ВВЕДЕНИЕ

Суперконденсаторы, также известные как электрические двойные слои, являются важной составляющей современных энергетических систем благодаря своей высокой энергоемкости и способности к быстрому заряду и разряду [1]. Однако для дальнейшего улучшения их характеристик необходимо разработать электродные материалы с высокой электропроводностью и большой поверхностью. В этом контексте класс 2D-материалов, известных как MXene, привлекает все больше внимания благодаря своим уникальным свойствам, которые делают их перспективными кандидатами для применения в суперконденсаторах [2, 3].

MXene представляют собой уникальный класс двумерных материалов, структура которых состоит из атомов металлов переходных металлов (например, Ti, Nb) и углерода или азота, что имеет общую химическую формулу $M_{n+1}X_nT_x$, где M – металл переходной группы, X – углерод (C) или азот (N), T_x — функциональные группы (например, -F, -OH, =O), а $n = 1, 2, 3$ характеризует число металлических слоев между слоями углерода или азота. Уникальная структура MXene обуславливает их исключительные свойства, включая высокую проводимость, электрокаталитическую активность и большую удельную площадь поверхности.

Процесс синтеза MXene состоит из нескольких этапов [4]. Сначала исходный MAX-фазный материал, например, Ti_3AlC_2 , подвергается травлению, в хо-

де которого элемент A (обычно алюминий, Al) селективно удаляется из кристаллической решетки. Эта реакция, например, при использовании раствора фтороводородной кислоты (HF), может быть выражена следующим образом:



На следующем этапе проводится эксфолиация для разделения полученных слоев $Ti_3C_2T_x$, что может быть достигнуто за счет ультразвуковой обработки или использования интеркаляционных агентов, таких как Li^+ . Завершающая стадия включает химическую функционализацию поверхности, в результате которой формируются функциональные группы (-F, -OH, -O), стабилизирующие структуру и придающие материалу дополнительные свойства.

Критическим аспектом является выбор реагентов и параметров синтеза (например, концентрации HF, температуры и времени реакции), которые позволяют контролировать морфологию и электрохимические характеристики MXene, включая межслойное расстояние, плотность функционализации и проводимость [5, 6].

MXene обладают высокой электропроводностью и широкой поверхностью, что способствует эффективной электрохимической активности. Исследования показывают, что MXene-электроды демонстрируют высокую энергоемкость и быструю скорость зарядки и разрядки [7]. Эти характеристики делают MXene привлекательными материалами для исполь-

зования в суперконденсаторах, где важны как высокая производительность, так и долговечность [8].

Исследования применения MXene в качестве электродных материалов для суперконденсаторов продемонстрировали перспективы данного подхода. MXene -электроды позволяют улучшить характеристики суперконденсаторов, включая повышение энергоемкости и стабильности работы на длительных циклах зарядки и разрядки [9]. Однако для дальнейшего понимания и оптимизации этого процесса требуется более глубокое исследование в области электрохимии и материаловедения.

Синтез MXene и его применение в роли электродного материала для суперконденсаторов представляют собой важный шаг в развитии эффективных и устойчивых энергетических систем [10]. Благодаря своим уникальным структурным и электрохимическим свойствам, MXene предоставляют перспективы для улучшения производительности суперконденсаторов и их широкого применения в различных сферах энергетики.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для предотвращения бурной экзотермической реакции, в концентрированную соляную кислоту (HCl) постепенно добавляли 1 г порошка Ti_3AlC_2 . К раствору при постоянном перемешивании с использованием магнитной мешалки, покрытой ПТФЭ, добавляли 0,666 г LiF. Перемешивание продолжали в течение 30 минут для полного растворения соли. Полученную суспензию выдерживали при заданной температуре в течение 24 часов.

После завершения реакции смесь промывали деионизированной водой или этанолом до нейтрального уровня pH (значение около 6). Промывание включало несколько циклов, каждый из которых состоял из добавления дистиллированной воды (или этанола), центрифугирования (3500 об/мин, 10 минут) и декантации. Обычно проводилось около четырех таких циклов.

Готовый раствор наносили на нержавеющую сталь, после чего образцы сушили на воздухе при комнатной температуре в течение 24 часов. Затем электроды формировали методом лазерной резки. Для электрохимических испытаний образцы тестировали с использованием потенциостата-гальваностата Elins P-40X. В качестве электролита применялся раствор 6 М KOH. Схема процесса и результаты тестирования приведены на рисунке 1.

На рисунке 1 представлен процесс получения и подготовки материала MXene из MAX-фазы. На этапе, показанном на рисунке 1а, для получения MXene используется процесс травления алюминия из MAX-фазы с применением соляной кислоты (HCl). Для обеспечения равномерного протекания реакции применяется песчаная баня, поддерживающая температуру 37 °C. Равномерный нагрев играет ключевую роль в контроле кинетики травления, предотвращая

локальные перегревы и неравномерное распределение продуктов реакции.

На рисунке 1б изображён процесс центрифугирования, который проводится после травления. Центрифугирование позволяет отделить образовавшиеся слои MXene от раствора HCl и побочных продуктов реакции, обеспечивая концентрированный осадок материала.

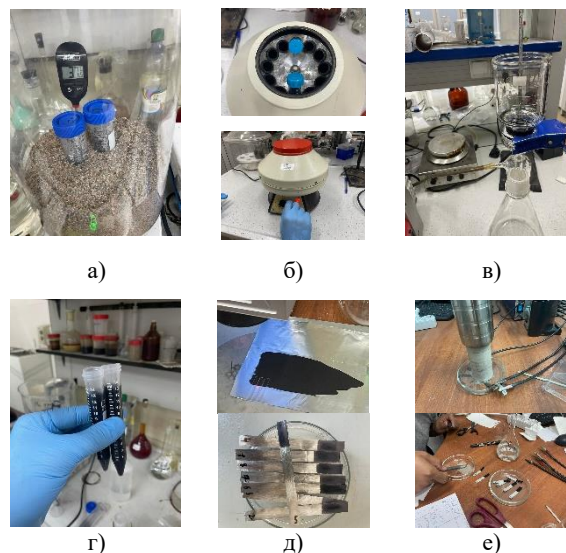


Рисунок 1. Процесс синтеза MXene и нанесение электрода для электрохимических испытаний

Следующий этап (рисунок 1в) включает фильтрацию и промывку. Полученный осадок многократно промывается дистиллированной водой до достижения нейтрального pH, что необходимо для удаления остаточного кислого раствора и солевых примесей. Это обеспечивает чистоту и химическую стабильность конечного материала.

На рисунке 1г показан готовый MXene в виде стабильной суспензии, полученной после фильтрации и промывки. Дисперсия MXene в водной среде сохраняет высокую однородность, что позволяет использовать её для дальнейших электрохимических исследований.

Рисунок 1д демонстрирует процесс нанесения MXene на поверхность нержавеющей фольги, которая служит токопроводящей основой для электродов. Суспензия равномерно распределяется по поверхности фольги, после чего материал нарезается на полосы стандартных размеров для сборки электрохимических ячеек.

На заключительном этапе, показанном на рисунке 1е, проводится сборка симметричной ячейки для электрохимического тестирования MXene в качестве материала для суперконденсаторов. Ячейка состоит из двух идентичных электродов, разделённых сепаратором и пропитанных электролитом. Этот этап позволяет исследовать электрохимические характеристики MXene, такие как удельная ёмкость, стабильность и эффективность заряд-разрядных циклов.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Наиболее известными методами характеризации, используемыми для анализа MXene, являются дифракция рентгеновских лучей (XRD) (рисунок 2) и сканирующая электронная микроскопия (SEM) (рисунок 3). Точная характеристика любого образца важна для подтверждения успеха синтеза материала. В случае анализа MXene должна быть обеспечена чистота MAX-фазы исходного материала, поскольку в большинстве доступных коммерческих или исследовательских образцов могут сосуществовать несколько MAX-фаз, что делает интерпретацию данных невозможной.

На рисунке 2 представлены рентгенограммы (XRD) двух материалов: MAX-фаза (а) и MXene (б).

На рисунке 2а наблюдаются характерные пики для MAX-фазы с индексами (002), (100), (008), (105), (106) и (107). MAX-фазы представляют собой соединения с общей формулой $M_{n+1}AX_n$ где М – переходный металл (например, Ti), А – элемент из группы 13 или 14 (например, Al), а X – углерод или азот. Пик (002) при малом угле $2\theta \sim 9^\circ$ указывает на высокую степень упорядоченности слоев, а сильный пик (008) подтверждает кристаллическую природу материала.

На рисунке 2б показана рентгенограмма MXene, который образуется после селективного травления А-элемента из MAX-фазы. Основной пик (002) смещен к более низкому углу $2\theta \sim 6^\circ$, что связано с увеличением межслоевого расстояния из-за интеркаляции функциональных групп (например, OH, F, O). Дополнительные пики (004) и (006) свидетельствуют о многослойной структуре MXene. Смещение пиков и их относительная интенсивность подтверждают образование MXene с упорядоченной структурой и увеличением расстояния между слоями по сравнению с исходной MAX-фазой.

Исследования показывают, что как метод сканирующей электронной микроскопии (SEM), так и рентгеновская дифрактометрия (XRD) играют важную роль в определении успешного производства MXene. Оба эти метода обладают выдающейся мощностью, и их получаемые данные, будь то графические или визуальные, способны выявить больше информации, чем можно было бы представить изначально.

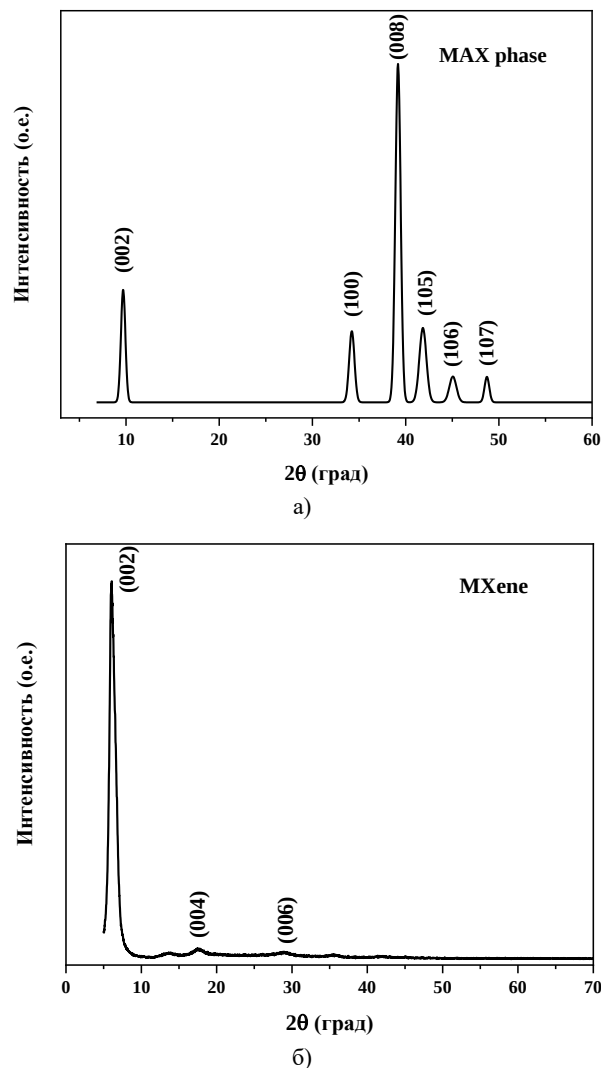


Рисунок 2. Данные XRD MAX фазы Ti_3AlC_2 (а) и $Ti_3C_2T_x$ MXene (б)

Преимущество использования обоих методов заключается в том, что они позволяют получить изображения высокого разрешения, увеличенные до очень высоких уровней, а также надежные и легко интерпретируемые данные. Это значительно способ-

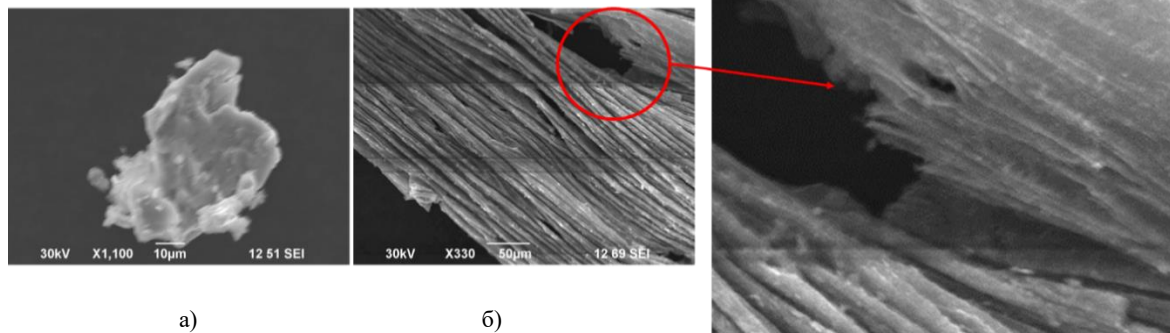


Рисунок 3. СЭМ-изображения, а) MAX фаз и б) полученного Мхене материала

ствуется успешному анализу МХене и может быть даже невозможно заменить другими методами.

На рисунке 3а изображена SEM-фотография МАХ фазы Ti_3AlC_2 с максимальной детализацией. С данными изображения можно установить, что порошок крупный и плотный. Дальнейшая детализация не получилась из-за ограничения СЭМ оборудования. После завершения процесса синтеза Мхене наблюдается наличие слоистой морфологии в материале, как продемонстрировано на рисунках 3б. Это свидетельствует о положительном результате синтеза Мхене, поскольку структурные характеристики материала соответствуют ожиданиям и подтверждают успешную реализацию синтеза.

В процессе тестирования в качестве электрода суперконденсатора были проведены различные характеризующие испытания, включая зарядно-разрядную характеристику, циклическую вольтамперометрию и измерение импеданса.

В ходе зарядно-разрядных испытаний с различ-

ными плотностями тока были получены следующие результаты: при плотности тока 200 мА/г электрода, емкость составила 48 Ф/г, при плотности тока 500 мА/г – 44 Ф/г, при плотности тока 1000 мА/г – 23 Ф/г, и при плотности тока 2000 мА/г – 12 Ф/г. Кроме того, было установлено внутреннее сопротивление суперконденсатора, равное 100 Ом (рисунок 4).

На рисунке 4б приведена импедансная диаграмма суперконденсатора на основе материалов Мхене. На графике: Ось X ($\text{Re}(\Omega)$) представляет собой реальную часть импеданса (сопротивление). Ось Y ($\text{Im}(\Omega)$) представляет собой мнимую часть импеданса (реактивное сопротивление). Характерная форма графика указывает на наличие элемента, который влияет на поведение импеданса. В начале, когда реальное сопротивление невелико, наблюдается почти прямолинейный участок, что может свидетельствовать о высокой проводимости и малом сопротивлении в интервале частот, где происходит быстрая зарядка и разрядка в суперконденсаторе.

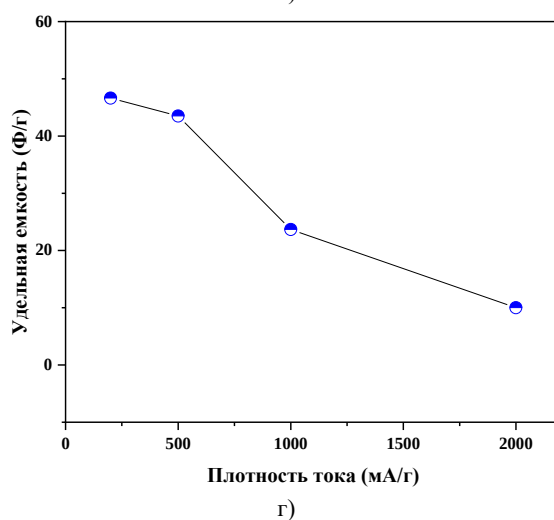
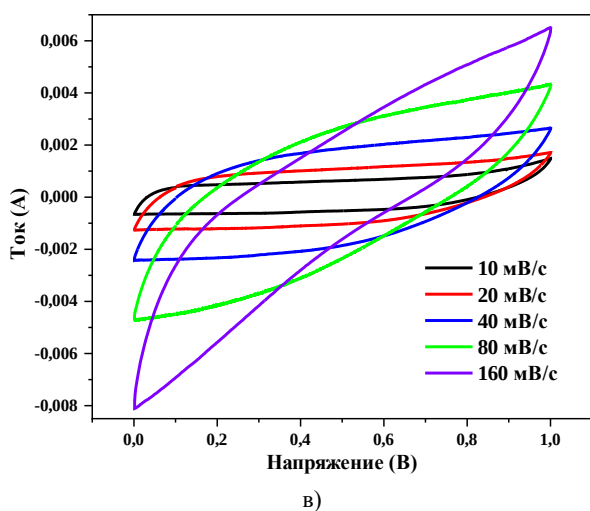
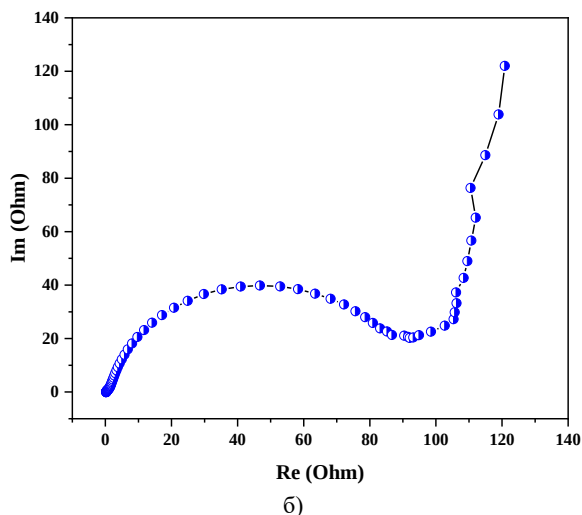
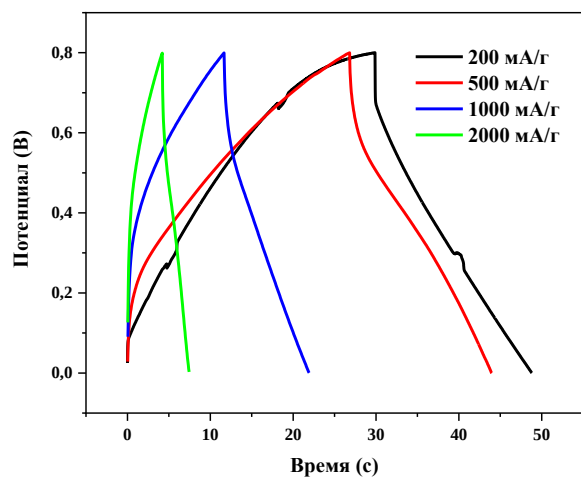


Рисунок 4. Электрохимические характеристики суперконденсатора: зарядно-разрядные испытания (а); измерение импеданса (б); циклическая вольтамперометрия (в); зависимость емкости при различных плотностях тока (г)

Таблица 1. Сравнение емкости материалов на основе MXene

Название	Емкость	Плотность	Электролит	Источники
Ti ₃ C ₂ T _x	108,6 Ф/г	5 мВ/с	1 М КОН	[11]
MXene	82,6 мФ/см ²	5 мВ/с	6 М КОН	[12]
MXene/Fe ₃ O ₄ /MXene	46,4 мФ/см ²	0,5 мА/см ²	Li ₂ SO ₄	[13]
Ti ₃ C ₂ T _x	26 мФ/см ²	1 А/г	1 М H ₂ SO ₄	[14]
MXene	48 Ф/г	200 мА/г	6 М КОН	данная работа

Далее, график резко повышается, что указывает на увеличение импеданса на высоких частотах, что может быть связано с явлениями, такими как ограничение на уровне интерфейса между электродом и электролитом или ограничения, вызванные внутренними сопротивлениями. Такой профиль импеданса является типичным для материалов с высоким поверхностным зарядом, таких как MXene, который обладает хорошей проводимостью и способностью эффективно хранить заряд. В таблице 1 приведено сравнение емкости материалов, используемых в качестве электрода суперконденсаторов.

На рисунке 4в представлена вольтамперограмма (ЦВ) суперконденсатора с электродами на основе MXene, где в качестве электролита использован 6 М КОН. Измерения проведены в диапазоне потенциалов от 0 до 1 В с различными скоростями сканирования: 10, 20, 40, 80 и 160 мВ/с. Форма ЦВ демонстрирует типичное для суперконденсаторов поведение, сочетающее емкостные и псевдоемкостные характеристики. На низких скоростях сканирования кривые сохраняют форму, свидетельствуя о высокой степени обратимости электрохимических процессов и стабильности материалов. При увеличении скорости сканирования наблюдается рост плотности тока, что указывает на улучшенное перемещение ионов в электролите и на электродах MXene. Использование 6 М КОН в качестве электролита способствует высокой проводимости и стабильности системы, а материал MXene обеспечивает низкое сопротивление и высокую удельную емкость. Это обусловлено уникальной слоистой структурой MXene, которая предоставляет обширные активные поверхности для взаимодействия ионов. Результаты демонстрируют, что система обладает высокой электрохимической стабильностью, быстрой зарядкой/разрядкой и перспективна для использования в высокоэффективных суперконденсаторах.

Анализ результатов подразумевает, что с увеличением плотности тока происходит снижение емкости электрода, что может быть обусловлено внутренними процессами на границах электрода и электролита. Это обстоятельство также может влиять на проявление эффекта внутреннего сопротивления при различных плотностях тока.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные испытания, включая дифракцию рентгеновских лучей (XRD) и сканирующую электронную микроскопию (SEM), позволили получить значимые результаты, касающиеся синтеза и характеристик MXene. Метод XRD сыграл ключевую роль в подтверждении чистоты MAX-фазы исходного материала, что является важным этапом для успешного синтеза MXene. Полученные данные показали, что с увеличением степени превращения MAX в MXene наблюдаются сдвиг пиков и уширение пика (002), что свидетельствует о значительных структурных изменениях материала.

Результаты сканирующей электронной микроскопии (SEM) позволили более детально оценить морфологию образцов, подтверждая изменения структуры при синтезе MXene. Это подчеркивает важность использования комбинированных методов для полного анализа и подтверждения качества материала.

Анализ электрода суперконденсатора показал важные закономерности в изменении емкости при различных плотностях тока. Снижение емкости при увеличении плотности тока связано с внутренними процессами на границах электрода и электролита, что подчеркивает необходимость более глубокого изучения взаимодействий между материалами. Также обнаруженное внутреннее сопротивление суперконденсатора оказывает значительное влияние на его производительность, что является важным фактором для дальнейших исследований.

Таким образом, использование методов XRD и SEM эффективно подтверждает успешность синтеза MXene и позволяет глубже понять его структурные и морфологические характеристики. Полученные данные могут послужить основой для оптимизации производственных процессов и улучшения характеристик суперконденсаторов, что открывает новые перспективы для их применения в различных энергетических технологиях.

Благодарность

Данное исследование финансировалось Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (грант № BR24992873).

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Otgonbayar Z. et al. Recent Advances in Two-Dimensional MXene for Supercapacitor Applications: Progress, Challenges, and Perspectives // *Nanomaterials*. – 2023. – Vol. 13. – No. 5. – P. 919.
2. Forouzandeh P., Pillai S. C. MXenes-based nanocomposites for supercapacitor applications // *Current Opinion in Chemical Engineering*. – 2021. – Vol. 33. – P. 100710.
3. Panda S. et al. MXene based emerging materials for supercapacitor applications: Recent advances, challenges, and future perspectives // *Coordination Chemistry Reviews*. – 2022. – Vol. 462. – P. 214518.
4. Chen Y. et al. MXene-based electrodes for supercapacitor energy storage // *Energy & Fuels*. – 2022. – Vol. 36. – No. 5. – P. 2390–2406.
5. Kumar S. et al. Supercapacitors based on $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene extracted from supernatant and current collectors passivated by CVD-graphene // *Scientific reports*. – 2021. – Vol. 11. – No. 1. – P. 649.
6. Nasrin K. et al. Insights into 2D/2D MXene heterostructures for improved synergy in structure toward next-generation supercapacitors: a review // *Advanced Functional Materials*. – 2022. – Vol. 32. – No. 18. – P. 2110267.
7. Ma R. et al. $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene for electrode materials of supercapacitors // *Journal of Materials Chemistry A*. – 2021. – Vol. 9. – No. 19. – P. 11501–11529.
8. Wang Y., Wang Y. Recent progress in MXene layers materials for supercapacitors: High-performance electrodes // *SmartMat*. – 2023. – Vol. 4. – No. 1. – P. e1130.
9. Zang X. et al. Enhancing capacitance performance of $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene as electrode materials of supercapacitor: from controlled preparation to composite structure construction // *Nano-Micro Letters*. – 2020. – Vol. 12. – P. 1–24.
10. Nam S. et al. $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene for wearable energy devices: Supercapacitors and triboelectric nanogenerators // *APL Materials*. – 2020. – Vol. 8. – No. 11.
11. Jayesh Che. et al. Synthesis and Characterizations of Titanium Carbide ($\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$) MXene Electrode for Supercapacitors // *Malaysian Journal of Chemistry*. – 2024. – Vol. 26(3). – P. 169–179.
12. Garg R., Agarwal A., Agarwal M. Synthesis and optimisation of MXene for supercapacitor application // *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*. – 2020. – T. 31. – C. 18614–18626.
13. Li H. et al. Laser crystallized sandwich-like MXene/ Fe_3O_4 /MXene thin film electrodes for flexible supercapacitors // *Journal of Power Sources*. – 2021. – Vol. 497. – P. 229882.
14. Wang K. et al. An all-solid-state flexible micro-supercapacitor on a chip // *Advanced Energy Materials*. – 2011. – Vol. 1.

**МХЕНЕ СИНТЕЗДЕУ ЖӘНЕ СУПЕРКОНДЕНСАТОРЛАРДЫҢ ЭЛЕКТРОДТЫҚ
МАТЕРИАЛЫ РЕТІНДЕ ҚОЛДАНУ**

**А. М. Алиярова³, М. Т. Джусамбаев¹, Қ. Асқарұлы^{1,2,3*}, С. Азат¹,
Ш. Султахан¹, К. Шакенов¹, Ұ. Е. Жантیکеев¹, Ж. Лиу¹**

¹⁾ *Satbayev University, Алматы, Қазақстан*

²⁾ *«Инженерно-научный хаб» ЖШС, Алматы, Қазақстан*

³⁾ *Ғұмарбек Дәукеев атындағы Алматы энергетика және
байланыс университеті, Алматы, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: k.askaruly@gmail.com

Мақала МХене алу процестерін және оларды суперконденсаторлар үшін электрод ретінде қолдануды зерттеуге арналады. МХене – бұл жоғары өткізгіштік және үлкен беткі ауданы сияқты ерекше электрохимиялық қасиеттерге ие екі өлшемді наноматериалдар. МХене-нің құрылымы мен физика-химиялық қасиеттері рентгендік дифракция, сканирлеуші электронды микроскопия және спектроскопия сияқты талдау әдістері арқылы зерттелді. МХене-нің электрохимиялық белсенділігі суперконденсаторларда қолдану контекстінде зерттелді. МХене электродтары бар суперконденсаторлардың зарядтау/разрядтау параметрлері, циклдік тұрақтылық және энергетикалық тығыздық зерттелді. Зерттеу нәтижелері МХене-нің тиімді электродтар ретінде қолданылу мүмкіндігін растайды. Алынған деректер МХене электродтарының жылдам зарядтау/разрядтау жылдамдығын көрсетеді, бұл оларды энергия сыйымдылығы жоғары қолданбалар үшін перспективті кандидаттар етеді. Бұл жұмыс МХене алу процестері мен олардың электрохимиялық сипаттамалары туралы терең түсінік алуға көмектеседі, бұл жоғары өнімділік пен ұзақ мерзімділікке ие суперконденсаторларды жетілдіру үшін жаңа мүмкіндіктер ашады.

Түйін сөздер: суперконденсатор, МХене, энергия, синтез, заряд-разряд.

SYNTHESIS OF MXENE AND ITS APPLICATION AS ELECTRODE MATERIAL
FOR SUPERCAPACITORS

A. M. Aliyarova³, M. T. Jusambaev¹, K. Askaruly^{1,2,3*}, S. Azat¹,
Sh. Sultahan¹, K. Shakenov¹, U. Ye. Zhantikeev¹, Zh. Liu¹

¹⁾ Satbayev University, Almaty, Kazakhstan

²⁾ Engineering and Science Hub, Almaty, Kazakhstan

³⁾ Almaty University of Power Engineering and Telecommunication
named Gumarbek Daukeev, Almaty, Kazakhstan

* E-mail for contacts: k.askaruly@gmail.com

The article is dedicated to the study of MXene synthesis processes and their application as electrodes for supercapacitors. MXenes are two-dimensional nanomaterials with unique electrochemical properties, such as high conductivity and large surface area. The structure and physicochemical properties of the synthesized MXenes were investigated using analytical methods such as X-ray diffraction, scanning electron microscopy, and spectroscopy. The electrochemical activity of MXenes was studied in the context of their application in supercapacitors. The charge/discharge parameters, cyclic stability, and energy density of supercapacitors with MXene electrodes were examined. The results confirm the potential of MXenes as effective electrodes for supercapacitors. The obtained data indicate the rapid charge/discharge rates of MXene electrodes, making them promising candidates for use in energy-dense applications. This work contributes to a better understanding of the processes involved in MXene synthesis and their electrochemical characteristics, opening new horizons for the development of advanced supercapacitors with enhanced performance and longevity.

Keywords: supercapacitor, MXene, energy, synthesis, charge-discharge.

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-181-190>

УДК 502.32

ПОЛУЧЕНИЕ НАНОЦЕЛЛЮЛОЗЫ ДЛЯ ОЧИСТКИ ВОДЫ ОТ КРАСИТЕЛЕЙ

**Л. Н. Сеймуханова¹, У. Е. Жантукеев^{1*}, К. С. Бексейтова¹, М. С. Кунарбекова¹,
Б. У. Рахимова¹, Б. Д. Фазылов², А. М. Загитова³, К. К. Кудайбергенов¹, С. Азат¹**

¹⁾ *Satbayev University, Алматы, Казахстан*

²⁾ *Частная школа им. Шокана Уалиханова, Алматы, Казахстан*

³⁾ *Средняя школа им. Сатпаева, Алматы, Казахстан*

* E-mail для контактов: nurlybekov_ulan@mail.ru

В условиях нарастающего промышленного загрязнения и недостаточной эффективности традиционных методов очистки сточных вод особенно остро встает вопрос поиска экологически чистых и эффективных сорбентов. Промышленные красители, попадая в водоемы, изменяют их цвет, токсичны и могут представлять серьезную угрозу для здоровья человека и экосистемы. Основная трудность заключается в том, что многие красители устойчивы к биологическому разложению, что усложняет их удаление стандартными методами очистки. Одним из перспективных материалов, способных решить эту проблему, является наноцеллюлоза, которая обладает уникальными свойствами: высокой удельной поверхностью, биосовместимостью и биоразлагаемостью. Полученная из возобновляемых источников, наноцеллюлоза может стать основой для экологически безопасных систем очистки воды. Это исследование направлено на изучение адсорбционных характеристик наноцеллюлозы, синтезированной из микрокристаллической целлюлозы, в отношении двух устойчивых водорастворимых красителей – метиленового синего и бенгальской розы. Результаты показали, что наноцеллюлоза эффективно адсорбирует метиленовый синий, достигая сорбционной емкости 35,87 мг/г, тогда как для бенгальской розы адсорбционная способность составила 26,11 мг/г, что объясняется различием в типах взаимодействий: химической и физической адсорбцией. Методики ИК-спектроскопии и рентгеновской дифрактометрии подтвердили структурные изменения, произошедшие при синтезе наноцеллюлозы, что положительно сказалось на ее сорбционных характеристиках. Морфологические исследования на оптическом и сканирующем электронном микроскопе также продемонстрировали высокую степень дисперсности и развитую пористую структуру наноцеллюлозы, что является важным для улучшения ее адсорбционных свойств.

Ключевые слова: наноцеллюлоза, адсорбция, очистка воды, промышленные красители, метиленовый синий, бенгальская роза, биоразлагаемые сорбенты, экологическая безопасность, водоочистка.

ВВЕДЕНИЕ

В условиях усиливающегося антропогенного воздействия на окружающую среду, вопрос очистки воды от различных загрязнителей, особенно промышленных красителей, становится крайне актуальным [1]. Попадание этих веществ в водоемы вследствие деятельности текстильной, кожевенной, бумажной и других отраслей промышленности приводит к серьезным экологическим проблемам [2]. Красители не только изменяют цвет воды, но и обладают токсическими, мутагенными и канцерогенными свойствами, что представляет угрозу для здоровья людей и экосистем в целом [3]. Проблема усложняется тем, что многие красители обладают устойчивостью к биологическому разложению, что делает их трудными для удаления с помощью традиционных методов водоочистки [4].

Поиск эффективных, экологически безопасных и доступных адсорбентов для удаления красителей из воды является важной задачей современной химии и материаловедения. В последние годы в этой области активно изучаются биологические сорбенты, в том числе наноцеллюлоза, получаемая из возобновляемого сырья, такого как древесные отходы и сельскохозяйственные субстраты [5]. Наноцеллюлоза – это

биополимер, обладающий рядом уникальных свойств, таких как высокая прочность, развитая удельная поверхность, биосовместимость и биоразлагаемость. Эти характеристики делают её актуальным материалом для использования в экологически безопасных методах очистки воды [6].

Основным преимуществом наноцеллюлозы является ее способность к эффективной адсорбции как катионных, так и анионных красителей, что объясняется наличием гидроксильных и других функциональных групп на поверхности частиц. Эти группы способны взаимодействовать с молекулами красителей через химическую и физическую адсорбцию, что расширяет потенциальные области применения наноцеллюлозы в водоочистке [7]. Благодаря своей природной возобновляемости и биоразлагаемости, наноцеллюлоза способствует созданию экологически безопасных систем водоочистки, эффективно удаляя красители из сточных вод [8].

Существует несколько методов получения наноцеллюлозы, включая механохимические процессы, кислотный гидролиз и ферментативные методы [9]. Выбор конкретного метода влияет на физико-химические свойства полученного материала, чтобы оптимизировать его для адсорбции определенных загряз-

нителей [10]. Наноцеллюлоза в чистом виде показывает высокую сорбционную способность, не требуя дополнительной модификации или использования композитов. По желанию наноцеллюлоза может быть модифицирована для повышения её сорбционной способности, что позволяет целенаправленно улучшать её свойства в зависимости от типов загрязнителей, которые требуется удалить из воды [11].

1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

1.1. Исходные материалы

Для синтеза использовали рисовую шелуху, собранную в Кызылординской области, которая предварительно очищалась и сушилась. В качестве реагентов применяли пероксосукусную кислоту (Sigma-Aldrich, США) для получения микрокристаллической целлюлозы (МКЦ), серную кислоту (Merck, Германия) для синтеза наноцеллюлозы, гидроксид калия (Sigma-Aldrich, США) для дополнительной очистки материала и дистиллированную воду, подготовленную в лабораторных условиях с использованием системы дистилляции GFL (Германия).

1.2. Получение микрокристаллической целлюлозы из рисовой шелухи

Для получения микрокристаллической целлюлозы (МКЦ) из рисовой шелухи (рисунок 1) сырьё предварительно промывают раствором гексана для удаления примесей и жирорастворимых компонентов. После сушки промытое сырьё в количестве 10 г смешивают с пероксосукусной кислотой в соотношении 1:14. Процесс получения МКЦ осуществляется путем кипячения смеси сырья и пероксосукусной кислоты в круглодонной колбе с обратным холодильником при температуре 90 °С в течение 120 минут при постоянном интенсивном перемешивании для обеспечения равномерного протекания реакции. По завершении реакции смесь охлаждают до температуры 25 °С, фильтруют через фильтровальную бумагу

и промывают дистиллированной водой до нейтрального значения pH ($pH = 7$) для удаления остатков кислоты. Затем полученный материал дополнительно промывают 1 М раствором гидроксида калия (KOH), чтобы устранить возможные остаточные продукты реакции и улучшить чистоту материала. После промывки материал снова обрабатывают дистиллированной водой до нейтрального pH. Завершающим этапом является сушка нейтрализованного МКЦ в лиофильной сушке до достижения постоянной массы. Высушенный материал сохраняют в эксикаторе для защиты от влаги воздуха.

1.3. Синтез наноцеллюлозы

Для синтеза наноцеллюлозы методом кислотного гидролиза (рисунок 2) берут 1 г микрокристаллической целлюлозы (МКЦ) и смешивают с 60% раствором серной кислоты в соотношении МКЦ к H_2SO_4 как 1:10 г/мл. При низкой температуре (0–5 °С) серную кислоту медленно вливают в МКЦ при постоянном перемешивании, чтобы обеспечить равномерное взаимодействие и предотвратить перегрев. Когда образуется гелеобразная масса, в смесь добавляют 25 мл деионизированной воды. Далее реакционную смесь нагревают на водяной бане при 40 °С в течение 1 часа, не прекращая интенсивного перемешивания. После завершения гидролиза наноцеллюлозу отделяют путем центрифугирования при 8000 об/мин в течение 15 минут. Полученный осадок промывают дистиллированной водой до тех пор, пока pH раствора не достигнет нейтрального значения 6–7, что свидетельствует об удалении остаточной кислоты. Очищенную наноцеллюлозу подвергают лиофильной сушке для удаления влаги, сохраняя структурные свойства материала. Высушенный продукт хранят в эксикаторе, защищенном от воздействия влаги, чтобы предотвратить его гидратацию.



Рисунок 1. Схема получения микрокристаллической целлюлозы из рисовой шелухи

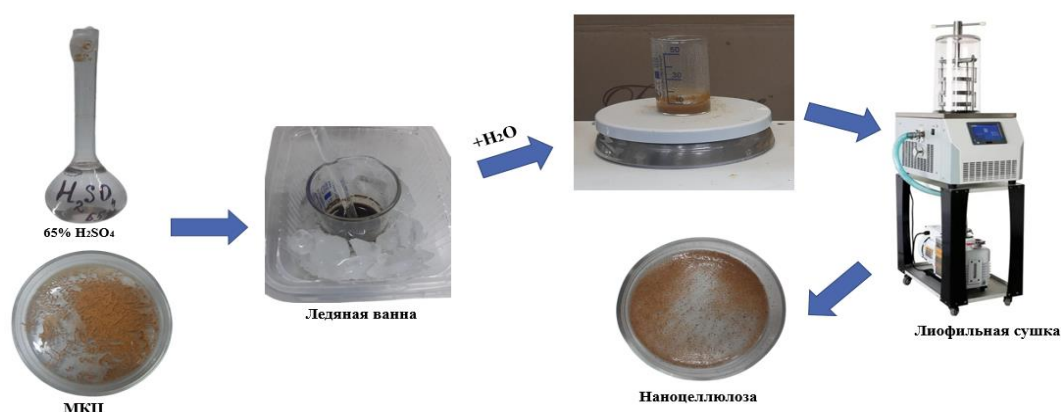


Рисунок 2. Схема получения наноцеллюлозы из микрокристаллической целлюлозы

1.4. БЭТ анализ

В работе было использовано полностью автоматизированный, высокопроизводительный анализатор удельной поверхности и размера пор «BSD-660» (Китай). Работа на данном устройстве включала предварительную дегазацию образцов при температуре 200 °С в течение 4 часов для удаления адсорбированных газов и влаги. Анализ проводился с использованием азота в качестве адсорбата при температуре жидкого азота, что позволило определить удельную поверхность и размеры пор методом БЭТ с высокой точностью.

1.5. Оптическая микроскопия

Для получения увеличенных изображений поверхности целлюлозы и наноцеллюлозы был использован оптический микроскоп DM 6000 M (производства Leica, Германия). Съемка проводилась в режимах светлого и темного поля с применением проходящего и отраженного света.

1.6. Сканирующая электронная микроскопия (СЭМ)

Для исследования структуры активированного угля была использована сканирующая электронная микроскопия с энергодисперсионной спектроскопией (СЭМ) на микроскопе Zeiss Evo 50 (Oxford Instruments, Кембридж, Великобритания). Изображения получены при ускоряющем напряжении в 20 кВ.

1.7. Рентгеновский дифракционный анализ (XRD)

Для анализа фазовой структуры целлюлозы и наноцеллюлозы применялся рентгеновский дифрактометр PANalytical X'PertPro с медным анодом, оснащенный герметичной рентгеновской трубкой мощностью 1,8 кВт и вертикальным тета-тета гониометром радиусом 240 мм. Данная установка обеспечивает горизонтальное положение образца во время сбора данных и позволяет использовать различные конфигурации и держатели для образцов.

1.8. Метод инфракрасной спектроскопии (ИК)

Для определения химического состава активиро-

ванного угля применяли метод инфракрасной спектроскопии с преобразованием Фурье (FTIR). Спектры регистрировались с использованием спектрометра (JSM-6490LA, Япония). Образцы активированного угля готовили для анализа, прессуя смесь активированного угля и KBr в соотношении 99,5% к 0,5% по массе в диск под давлением 10 т/см². Анализ проводился при 32 сканах с разрешением 1 см⁻¹.

1.9. Метод ультрафиолетового облучения (УФ) и исследования сорбционных свойств наноцеллюлозы по отношению к водорастворимым красителям

Измерение УФ-спектра поглощения проводили с помощью спектрофотометра модели PI-C-7000UV (Китай). Высокая точность определения эффективности удаления красителей (до второго знака после запятой) обусловлена применением чувствительного оборудования и тщательной стандартизации измерений. Каждый эксперимент проводился трижды для повышения точности результатов, а полученные значения усреднялись. В ходе экспериментов были построены калибровочные графики, что позволило минимизировать погрешности и обеспечить высокую воспроизводимость результатов. Для создания калибровочной зависимости использовали раствор йодида калия с концентрациями в диапазоне от 5 до 20 мг/л. Сорбционную емкость определяли по формуле:

$$q_t = \frac{(C_0 - C_t)v}{m}, \quad (1)$$

где C_0 и C_t – начальная и конечная концентрации ионов йода в растворе (г/л); v – объем раствора (л); m – масса использованного сорбента (г).

Для исследования сорбционных свойств наноцеллюлозы по отношению к красителям в водной среде был применен ультрафиолетовый спектрофотометр. Вначале были приготовлены растворы метиленового синего и Бенгальской розы. Калибровочный график строился на основе растворов красителей в диапазоне концентраций от 1 до 25 мг/л. Для эксперимента использовали концентрации метиленового синего и бенгальской розы в 1 мг/г, 2,5 мг/г, 5 мг/г, 10 мг/г и

25 мг/г. В колбы объемом 150 мл вносили по 50 мл каждого раствора и добавляли 0,1 г наноцеллюлозы. Колбы помещали на шейкер для эффективного перемешивания. В результате были построены кривые адсорбции, отражающие кинетику и изотермы процесса.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

2.1. Измерение удельной поверхности

Для подтверждения увеличения удельной поверхности при переходе от МКЦ к наноцеллюлозе применяли метод БЭТ-анализа. Активированный уголь, несмотря на его большую удельную поверхность, не использовался в данном исследовании, так как целью работы было изучение материалов на основе целлюлозы. Микрокристаллическая целлюлоза также не использовалась в сорбционных экспериментах из-за её низкой удельной поверхности ($15 \text{ м}^2/\text{г}$), которая существенно ограничивает её эффективность. В переходе от МКЦ к НКЦ происходит значительное увеличение удельной поверхности до $120 \text{ м}^2/\text{г}$ (таблица 1), что обусловлено дроблением структуры и увеличением количества доступных активных центров, что положительно сказывается на её сорбционных свойствах.

Таблица 1. Удельные поверхности образцов МКЦ и НКЦ

Образец	Удельная поверхность ($\text{м}^2/\text{г}$)
МКЦ	15
НКЦ	120

2.2. Результаты оптического микроскопа

На фото, полученных с использованием оптического микроскопа (рисунок 3), представлены структуры целлюлозы и наноцеллюлозы. Изображения (а) и (б) демонстрируют целлюлозные волокна, отличающиеся крупной и неоднородной морфологией. Фрагменты волокон имеют разнообразные размеры и формы, а их относительно грубая текстура указывает на низкую степень дисперсии, характерную для более крупной целлюлозы. В отличие от них, на изображениях (в) и (г) показаны частицы наноцеллюлозы, которые выглядят более мелкими и однородными. Частицы наноцеллюлозы более дисперсные, с гладкими краями и меньшими размерами, что позволяет предположить их пригодность в качестве наноструктурированного материала с увеличенной площадью поверхности по сравнению с обычной целлюлозой.

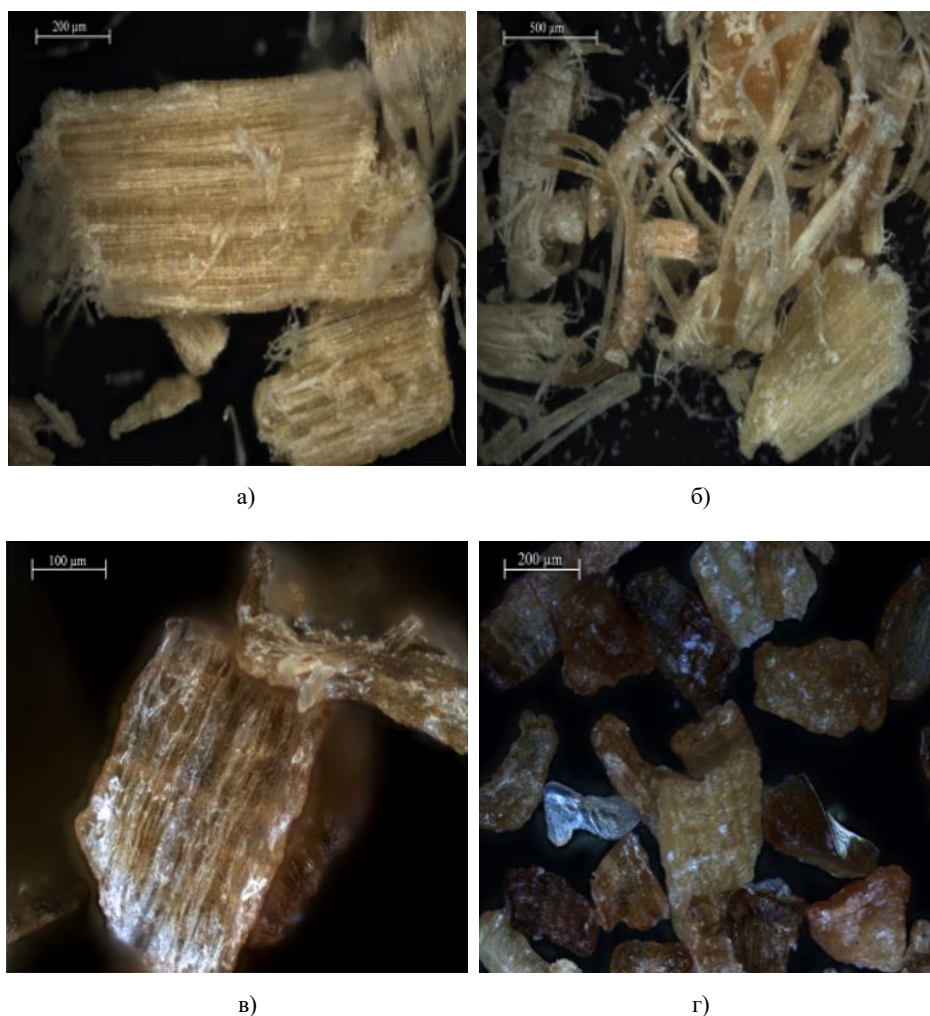


Рисунок 3. Снимки оптического микроскопа (а, б – целлюлоза, в, г – наноцеллюлоза)

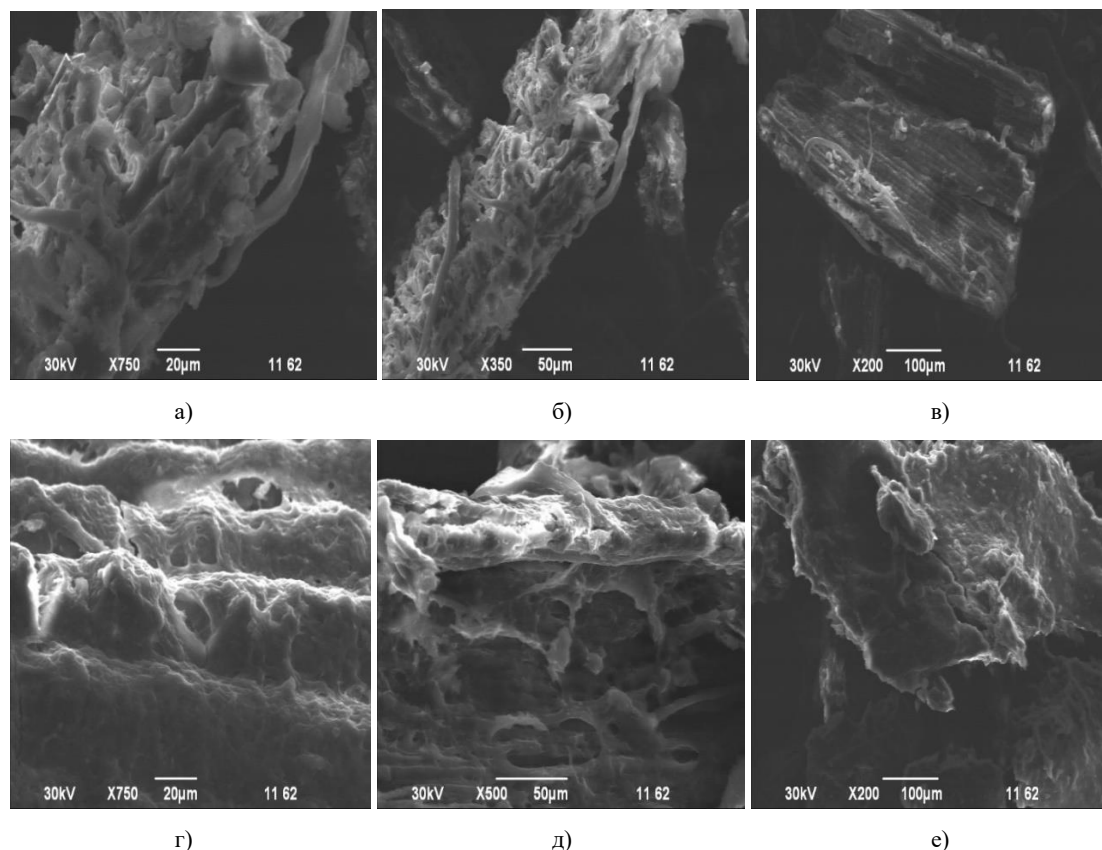


Рисунок 4. Снимки СЭМ (а, б, в – целлюлоза; г, д, е – наноцеллюлоза)

2.3. Результаты СЭМ

Сканирующая электронная микроскопия позволила детально рассмотреть морфологические особенности целлюлозы и наноцеллюлозы (рисунок 4). Снимки (а), (б) и (в) показывают структуру целлюлозы, характеризующуюся крупными волокнистыми элементами с заметной пористостью и рыхлой текстурой. Волокна целлюлозы различаются по размеру и форме, образуя переплетения и пустоты, что обеспечивает значительную площадь поверхности, хотя и ограничивает уровень дисперсности.

На снимках (г), (д) и (е) представлена наноцеллюлоза, отличающаяся более мелкими и однородными структурами. В наноцеллюлозе видны небольшие поры и гладкие поверхности, что указывает на высокую степень дисперсии и более равномерное распределение частиц. Компактная и мелкодисперсная структура наноцеллюлозы обеспечивает значительно большую площадь поверхности, что позволяет использовать в сорбционных и каталитических процессах. Эти результаты подчеркивают морфологические отличия между целлюлозой и наноцеллюлозой и их возможные области применения.

2.4. Результаты рентгеновского дифракционного анализа

Результаты рентгеновского дифракционного анализа целлюлозы и наноцеллюлозы, представленные на дифрактограмме (рисунок 5), показывают разли-

чия в интенсивности и позициях основных пиков, что позволяет оценить изменения в их структурных характеристиках. Основной пик для наноцеллюлозы расположен при $2\theta \approx 22,2^\circ$, тогда как для целлюлозы он наблюдается при $2\theta \approx 21,9^\circ$. Это свидетельствует о возможных деформационных искажениях в структуре, вызванных процессом получения.

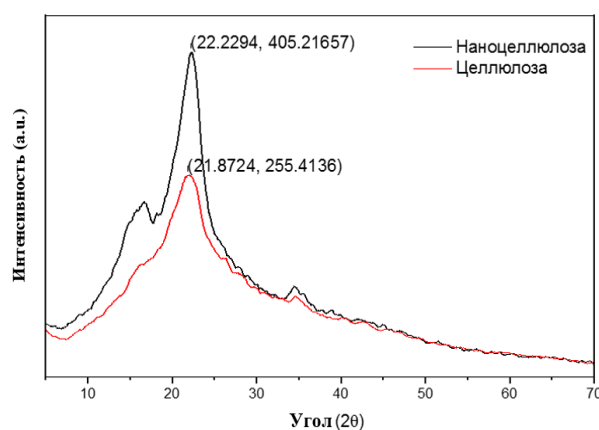


Рисунок 5. Дифрактограмма XRD

Усиление интенсивности пика наноцеллюлозы (405,21657 против 255,4136 для целлюлозы) может быть связано с изменением размеров кристаллитов или перераспределением аморфных и кристаллических областей в процессе обработки. Однако для точ-

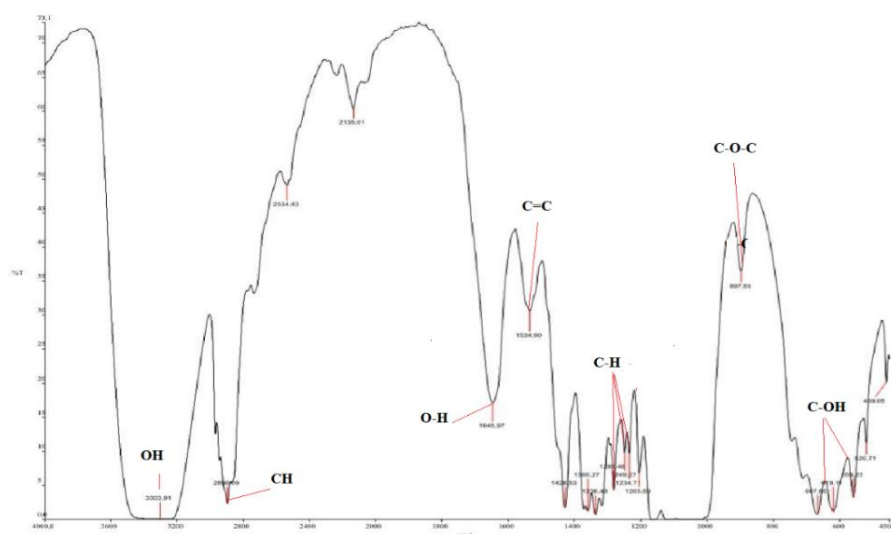
ной оценки степени кристалличности был проведён расчёт на основе соотношения площадей кристаллических и аморфных областей, с учётом фонового излучения. Полученные результаты показывают, что степень кристалличности наноцеллюлозы составляет около 61,34%, что подтверждает её более упорядоченную структуру по сравнению с исходной целлюлозой.

Наблюдаемый сдвиг пиков указывает на деформационные изменения в структуре, которые могут быть вызваны изменением межплоскостных расстояний при механической и химической обработке цел-

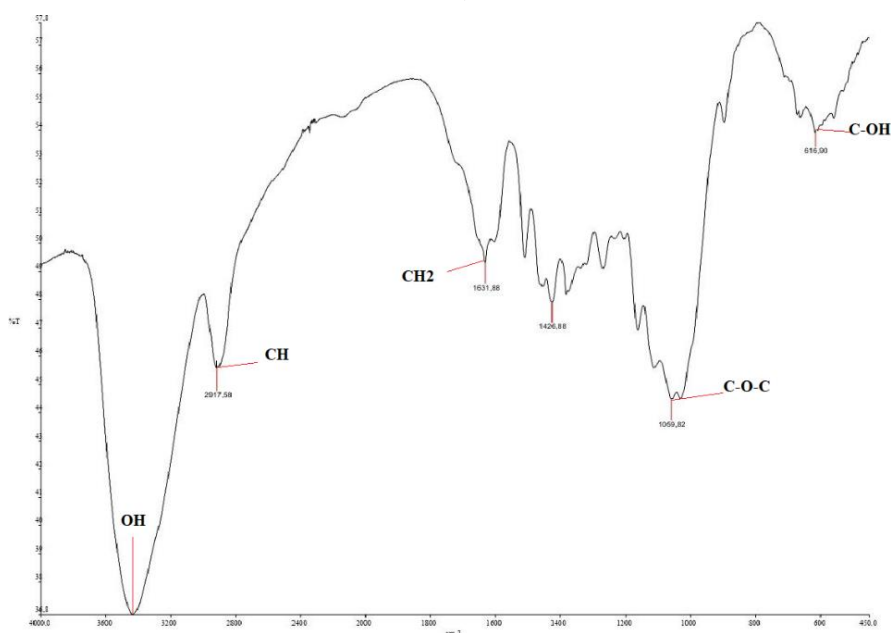
люлозы. Эти изменения подтверждают, что процесс преобразования целлюлозы в наноцеллюлозу сопровождается структурными модификациями.

2.5. Результаты ИК-спектроскопии

Инфракрасные (ИК) спектры образцов целлюлозы и наноцеллюлозы (рисунок 6) показывают характерные пики, соответствующие различным функциональным группам, и позволяют оценить изменения в химической структуре материала при его преобразовании.



a)



б)

Рисунок 6. ИК спектры целлюлозы и наноцеллюлозы

На спектре целлюлозы (рисунок 6а) присутствуют интенсивные полосы поглощения в области 3330 см^{-1} , которые указывают на валентные колебания гидроксильных групп (О–Н). Пик в области 2890 см^{-1} связан с валентными колебаниями С–Н, а пики около 1635 см^{-1} и 1370 см^{-1} свидетельствуют о присутствии С=С и О–Н соответственно. Также наблюдаются полосы поглощения в области 1155 см^{-1} и 897 см^{-1} , которые соответствуют колебаниям связей С–О–С и С–ОН, указывая на наличие гликозидных связей в структуре целлюлозы.

На ИК спектре наноцеллюлозы (рисунок 6б) отмечаются сходные полосы поглощения, однако их интенсивность и положение несколько отличаются, что свидетельствует о структурных изменениях в процессе превращения целлюлозы в наноцеллюлозу. Гидроксильные группы (О–Н) также показывают характерный пик в области 3330 см^{-1} , хотя его интенсивность может указывать на более высокую степень водородного связывания. В области 2900 см^{-1} присутствует пик, соответствующий С–Н, а пики при 1600 см^{-1} и 1408 см^{-1} свидетельствуют о колебаниях CH_2 и С–О–С. Пик в районе 1025 см^{-1} указывает на присутствие связей С–О–С, что характерно для структуры наноцеллюлозы.

Эти различия в ИК спектрах целлюлозы и наноцеллюлозы указывают на изменения в химическом окружении функциональных групп, происходящие при её преобразовании в наноструктурированную форму.

2.6. Сорбция красителей

Адсорбционные свойства наноцеллюлозы (НКЦ) при удалении метиленового синего из водных растворов демонстрируют высокую эффективность и быстроту процесса. На рисунке 7 показана кинетика адсорбции при разных начальных концентрациях красителя (1, 2,5, 5, 10 и 25 ppm), подтверждая, что основная часть адсорбции происходит в первые часы.

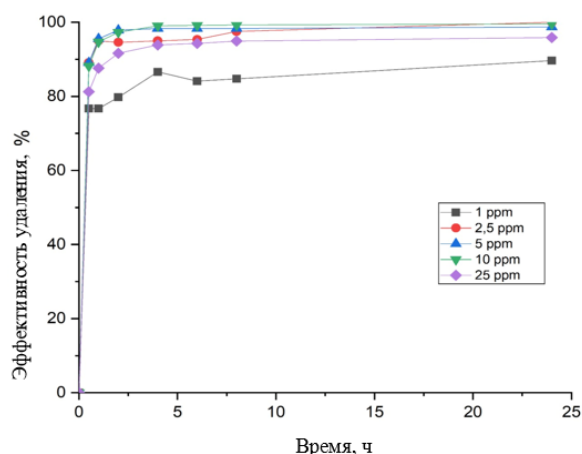


Рисунок 7. Кинетика адсорбции метиленового синего на НКЦ

На графике видно, что при всех концентрациях эффективность удаления красителя стремительно увеличивается в начальные моменты времени, а затем стабилизируется, достигая почти 100% в течение 24 часов. При концентрации 1 ppm, например, адсорбция достигает 80,66% уже через 2 часа и полностью завершена к 24 часам. Более высокие концентрации, такие как 25 ppm, также показывают высокую эффективность, но для стабилизации требуется немного больше времени. Результаты адсорбции приведены в таблице 2.

Таблица 2. Результаты адсорбции метиленового синего на НКЦ

t, ч	Метиленовый синий, эффективность удаления, %				
	1 ppm	2,5 ppm	5 ppm	10 ppm	25 ppm
0	0	0	0	0	0
0,5	76,685	89,115	89,092	88,175	81,234
1	76,685	94,978	95,555	94,719	87,598
2	79,777	94,587	97,842	97,317	91,640
4	86,580	94,978	98,339	99,066	93,882
6	84,106	95,368	98,339	99,166	94,282
8	84,725	97,518	98,339	99,266	94,923
24	89,672	100,000	98,737	99,565	95,883

На рисунке 8 представлены результаты кинетики адсорбции Бенгальской розы на наноцеллюлозу (НКЦ) при различных начальных концентрациях красителя (1, 2,5, 5, 10 и 25 ppm). В отличие от метиленового синего, адсорбция Бенгальской розы на НКЦ происходит менее эффективно, что видно по более низким значениям эффективности удаления красителя в течение 24 часов. На графике показано, что, хотя эффективность адсорбции увеличивается в первые несколько часов, она достигает стабильного уровня ниже 90% и больше не увеличивается, даже спустя 24 часа. Максимальная эффективность, достигнутая для Бенгальской розы, составляет примерно 86,88% при самых низких концентрациях. В таблице 3 более подробно показано как эффективность адсорбции изменяется со временем для каждой концентрации. В частности, при концентрации 1 ppm адсорбция достигает 59,41% через 0,5 часа и постепенно увеличивается до 86,88% через 24 часа. При концентрации 25 ppm эффективность адсорбции значительно ниже, достигая всего 56,83% за тот же временной период, что указывает на возможные ограничения НКЦ при более высоких концентрациях.

Исходя из результатов, можно сказать, что НКЦ имеет более низкую сорбционную способность по отношению к бенгальской розе по сравнению с метиленовым синим. Это может быть связано с различиями в физико-химических свойствах красителей и механизмами их взаимодействия с наноцеллюлозой.

Таблица 3. Результаты адсорбции Бенгальской розы наноцеллюлозой (НКЦ)

t, ч	Бенгальская роза, эффективность удаления, %				
	1 ppm	2,5 ppm	5 ppm	10 ppm	25 ppm
0	0	0	0	0	0
0,5	59,415	68,239	72,907	78,436	42,811
1	59,415	69,082	75,158	80,518	45,600
2	59,415	71,188	76,958	83,526	48,854
4	56,673	71,188	78,083	84,567	54,224
6	58,501	73,715	78,533	85,956	56,806
8	61,243	74,558	80,783	86,881	60,266
24	63,985	77,085	82,808	86,881	68,684

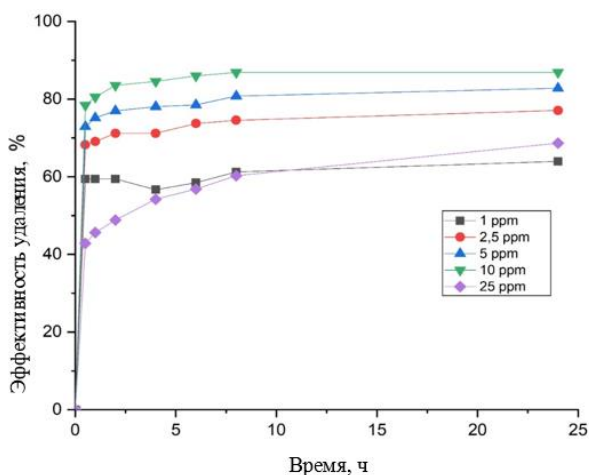


Рисунок 8. Кинетика адсорбции бенгальской розы на НКЦ

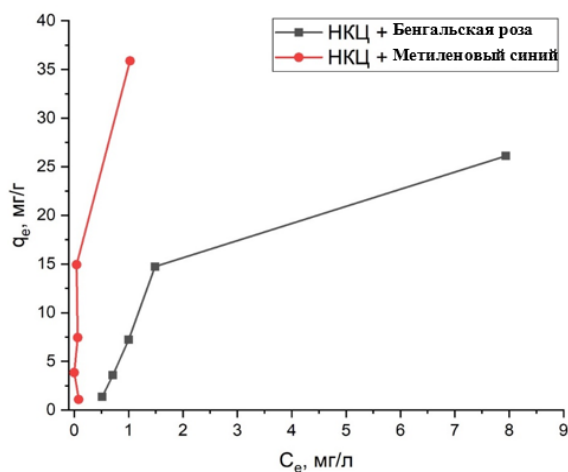


Рисунок 9. Изотермы адсорбции бенгальской розы и метиленового синего на НКЦ

Изотермы адсорбции позволяют оценить сорбционные свойства наноцеллюлозы (НКЦ) в отношении различных красителей, таких как метиленовый синий и бенгальская роза. На представленном графике (рисунок 9) адсорбции показывают, что наноцеллюлоза (НКЦ) более эффективно поглощает метиленовый синий, достигая сорбционной емкости 35,87 мг/г, что указывает на вероятную химическую природу взаимодействия.

В случае с бенгальской розой сорбционная емкость ниже – около 26,11 мг/г, что может объясняться физической адсорбцией. Эти результаты доказывают, что НКЦ хорошо справляется с удалением метиленового синего, но менее эффективен для бенгальской розы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной статье проведено комплексное исследование сорбционных свойств наноцеллюлозы (НКЦ), синтезированной из микрокристаллической целлюлозы, для удаления водорастворимых красителей, таких как метиленовый синий и бенгальская роза. Эксперименты показали, что НКЦ обладает высокой эффективностью адсорбции по отношению к метиленовому синему, что, вероятно, связано с химической природой взаимодействия. Изотермы адсорбции показали, что максимальная сорбционная емкость НКЦ для метиленового синего достигает 35,87 мг/г, что значительно выше, чем для бенгальской розы (26,11 мг/г), адсорбция которой, предположительно, обусловлена физическим взаимодействием.

ИК-спектроскопия и результаты рентгеновского дифракционного анализа подтвердили структурные изменения, происходящие в процессе синтеза НКЦ, обеспечивая материалу развитую площадь поверхности и наличие функциональных групп, способствующих эффективной адсорбции красителей. Данные оптической и сканирующей электронной микроскопии также показали отличия в морфологии и текстуре НКЦ, что подчеркивает высокую дисперсность и однородность частиц.

Таким образом, проведенные исследования показали, что наноцеллюлоза обладает потенциалом как эффективный сорбент для очистки водных растворов от органических красителей. В дальнейшем можно изучить модификацию НКЦ или разработку композитных материалов на его основе для расширения спектра удаляемых загрязнителей и повышения эффективности сорбции.

Благодарность

Исследование проведено при финансовой поддержке Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (грант № BR27199301).

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

- Momina, M., Shahadat, M., & Isamil, S. (2018). Regeneration performance of clay-based adsorbents for the removal of industrial dyes: a review // RSC Advances. – 2018. – Vol. 8(43). – P. 24571–24587. <https://doi.org/10.1039/c8ra04290j>
- Periyasamy, A. P. (2024). Recent advances in the remediation of Textile-Dye-Containing wastewater: prioritizing human health and sustainable wastewater treatment // Sustainability. – 2024. – Vol. 16(2), – P. 495. <https://doi.org/10.3390/su16020495>
- Alsukaibi, A. K. D. (2022). Various approaches for the detoxification of toxic dyes in wastewater // Processes. –

2022. – Vol. 10(10). – P. 1968.
<https://doi.org/10.3390/pr10101968>
4. Arora, S. Textile Dyes: It's Impact on Environment and its Treatment // Journal of Bioremediation & Biodegradation. – 2014. – Vol. 05(03). <https://doi.org/10.4172/2155-6199.1000e146>
 5. Varghese, A. G., Paul, S. A., & Latha, M. S. Cellulose Based Green Adsorbents for Pollutant Removal from Wastewater // Environmental chemistry for a sustainable world. – 2018. – P. 127–157. https://doi.org/10.1007/978-3-319-92162-4_4
 6. Kolya, H., & Kang, C. Next-Generation water Treatment: Exploring the potential of Biopolymer-Based nanocomposites in adsorption and membrane filtration // Polymers. – 2023. – Vol. 15(16). – P. 3421. <https://doi.org/10.3390/polym15163421>
 7. Voisin, H., Bergström, L., Liu, P., & Mathew, A. Nanocellulose-Based materials for water purification // Nanomaterials. – 2017. – Vol. 7(3). – P. 57. <https://doi.org/10.3390/nano7030057>
 8. Salama, A., Abouzeid, R., Leong, W. S., Jeevanandam, J., Samyn, P., Dufresne, A., Bechelany, M., & Barhoum, A. Nanocellulose-Based materials for water treatment: adsorption, photocatalytic degradation, disinfection, antifouling, and nanofiltration // Nanomaterials. – 2021. – Vol. 11(11). – P. 3008. <https://doi.org/10.3390/nano11113008>
 9. Michelin, M., Gomes, D. G., Romani, A., De Lourdes T M Polizeli, M., & Teixeira, J. A. Nanocellulose production: Exploring the enzymatic route and residues of pulp and paper industry // Molecules. – 2020. – Vol. 25(15), – P. 3411. <https://doi.org/10.3390/molecules25153411>
 10. Thakur, V., Guleria, A., Kumar, S., Sharma, S., & Singh, K. Recent advances in nanocellulose processing, functionalization and applications: a review // Materials Advances. – 2021. – 2(6). – P. 1872–1895. <https://doi.org/10.1039/d1ma00049g>
 11. Norraahim, M. N. F., Kasim, N. a. M., Knight, V. F., Misenan, M. S. M., Janudin, N., Shah, N. a. A., Kasim, N., Yusoff, W. Y. W., Noor, S. a. M., Jamal, S. H., Ong, K. K., & Yunus, W. M. Z. W. Nanocellulose: a bioadsorbent for chemical contaminant remediation // RSC Advances. – 2021. – Vol. 11(13). – P. 7347–7368. <https://doi.org/10.1039/d0ra08005e>

СУДЫ БОЯГЫШТАРДАН ТАЗАРТУ ҮШІН НАНОЦЕЛЛЮЛОЗА АЛУ

**Д. Н. Сеймуханова¹, Ү. Е. Жантукеев^{1*}, К. С. Бексейтова¹, М. С. Кунарбекова¹,
Б. У. Рахимова¹, Б. Д. Фазылов², А. М. Загитова³, К. К. Кудайбергенов¹, С. Азат¹**

¹⁾ *Satbayev University, Алматы, Қазақстан*

²⁾ *Шоқан Уәлиханов атындағы жеке мектеп, Алматы, Қазақстан*

³⁾ *Қ. И. Сәтбаев атындағы орта мектеп, Алматы, Қазақстан*

* Байланыс үшін E-mail: nurlybekov_ulan@mail.ru

Өнеркәсіптік ластанудың жоғарылауы және ағынды суларды тазартудың дәстүрлі әдістерінің тиімділігінің жеткіліксіздігі жағдайында экологиялық таза және тиімді сорбенттерді іздеу мәселесі ерекше өткір болып отыр. Өнеркәсіптік бояғыштар су объектілеріне түсіп, олардың түсін өзгертеді, улы болып табылады және адам денсаулығы мен экожүйеге үлкен қауіп төндіруі мүмкін. Негізгі қиындық – көптеген бояғыштар биологиялық ыдырауға төзімді, бұл оларды стандартты тазалау әдістерімен жоюды қиындатады. Бұл мәселені шешуге қабілетті перспективалы материалдардың бірі-бірегей қасиеттері бар наноцеллюлоза: жоғары меншікті беті, биоүйлесімділігі және биологиялық ыдырауы. Жаңартылатын көздерден алынған наноцеллюлоза экологиялық таза суды тазарту жүйелеріне негіз бола алады. Бұл зерттеу суда еритін екі бояғышқа – метилен көк және Бенгал раушанына қатысты микрокристалды целлюлозадан синтезделген наноцеллюлозаның адсорбциялық сипаттамаларын зерттеуге бағытталған. Нәтижелер наноцеллюлозаның метилен көкін тиімді адсорбциялайтынның көрсетті, сорбциялық сыйымдылығы 35,87 мг/г, ал Бенгал раушаны үшін адсорбция қабілеті 26,11 мг/г құрады, бұл өзара әрекеттесу түрлерінің айырмашылығымен түсіндіріледі: химиялық және физикалық адсорбция. ИК-спектроскопия және рентгендік дифрактометрия әдістері наноцеллюлоза синтезінде болған құрылымдық өзгерістерді растады, бұл оның сорбциялық сипаттамаларына оң әсер етті. Оптикалық және сканерлеуші электронды микроскоптағы морфологиялық зерттеулер сонымен қатар наноцеллюлозаның жоғары дисперсиялық дәрежесін және дамыған кеуекті құрылымын көрсетті, бұл оның адсорбциялық қасиеттерін жақсарту үшін маңызды.

Түйін сөздер: наноцеллюлоза, адсорбция, суды тазарту, өнеркәсіптік бояғыштар, метилен көк, Бенгал раушаны, биологиялық ыдырайтын сорбенттер, экологиялық қауіпсіздік, суды тазарту.

PRODUCTION OF NANOCELLULOSE FOR WATER PURIFICATION FROM DYES

L. N. Seimukhanova¹, U. Ye. Zhantikeev^{1*}, K. S. Bexeitova¹, M. S. Kunarbekova¹,
B. U. Rakhimova¹, B. D. Fazylov², A. M. Zagitova³, K. K. Kudaibergenov¹, S. Azat¹

¹⁾ *Satbayev University, Almaty, Kazakhstan*

²⁾ *Private school named after Shokan Ualikhanov, Almaty, Kazakhstan*

³⁾ *Secondary school named after K.I. Satbayev, Almaty, Kazakhstan*

* E-mail for contacts: nurlybekov_ulan@mail.ru

In the context of increasing industrial pollution and insufficient efficiency of traditional wastewater treatment methods, the issue of finding environmentally friendly and effective sorbents is particularly acute. Industrial dyes entering reservoirs change their color, are toxic and can pose a serious threat to human health and the ecosystem. The main difficulty lies in the fact that many dyes are resistant to biodegradation, which complicates their removal by standard cleaning methods. One of the promising materials that can solve this problem is nanocellulose, which has unique properties: high specific surface area, biocompatibility and biodegradability. Obtained from renewable sources, nanocellulose can become the basis for environmentally friendly water treatment systems. This study is aimed at studying the adsorption characteristics of nanocellulose synthesized from microcrystalline cellulose in relation to two stable water – soluble dyes – methylene blue and bengal rose. The results showed that nanocellulose effectively adsorbs methylene blue, reaching a sorption capacity of 35.87 mg/g, whereas for Bengal rose the adsorption capacity was 26.11 mg/g, which is explained by the difference in the types of interactions: chemical and physical adsorption. The methods of IR spectroscopy and X-ray diffractometry confirmed the structural changes that occurred during the synthesis of nanocellulose, which had a positive effect on its sorption characteristics. Morphological studies using optical and scanning electron microscopes have also demonstrated a high degree of dispersion and a developed porous structure of nanocellulose, which is important for improving its adsorption properties.

Keywords: *nanocellulose, adsorption, water purification, industrial dyes, methylene blue, Bengal rose, biodegradable sorbents, environmental safety, water treatment.*

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-191-195>

УДК 621.039.587

РАЗРАБОТКА ТЕПЛОФИЗИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ЭЛЕКТРОПЛАВИЛЬНОЙ ПЕЧИ УСТАНОВКИ «EAGLE» ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ПРОТОТИПА КОРИУМА РЕАКТОРА НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ С НАТРИЕВЫМ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕМ

А. С. Акаев, К. О. Толеубеков*, М. К. Бекмулдин, Г. Нурпаисова, С. Хасенова

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

* E-mail для контактов: toleubekov@nnc.kz

В настоящей статье приведены результаты моделирования температурного поля электроплавильной печи установки «EAGLE». В процессе моделирования была создана двухмерная осесимметричная теплофизическая модель в программном комплексе ANSYS и проведена валидация модели путем сравнения расчетных значений температуры с экспериментальными данными. Валидация модели показывает, что отклонение расчетных и экспериментальных значений температур в контрольных точках не превышают допустимых пределов. Таким образом, разработанная теплофизическая модель может быть использована при обосновании дальнейших экспериментов на установке «EAGLE».

Ключевые слова: кориум, индукционный нагрев, валидация, ANSYS, моделирование, установка «EAGLE».

ВВЕДЕНИЕ

Обеспечение безопасной эксплуатации ядерных реакторов является одной из важнейших задач атомной энергетики. Для решения вопросов, связанных с безопасностью энергетических реакторов, проводится большой объем работ, включающих в себя как теоретические, так и экспериментальные исследования [1–2]. Такие исследования проводятся и в Институте атомной энергии Национального ядерного центра Республики Казахстан, в том числе и в отношении реакторов на быстрых нейтронах с жидкометаллическими теплоносителями [3–4].

Для проведения таких экспериментов одной из базовых является экспериментальная установка «EAGLE», предназначенная для исследования процессов, сопровождающих тяжелые аварии с плавлени-

ем активной зоны энергетических ядерных реакторов на быстрых нейтронах [5–6]. Установка включает в себя два основных функциональных узла: электроплавильную печь (ЭПП) для подготовки расплава кориума и экспериментальное устройство для моделирования исследуемых процессов.

ЭПП позволяет получить до 26 кг расплава (прототип кориума, далее – кориум), содержащего диоксид урана, окись циркония и нержавеющую сталь или до 15 кг расплава окиси алюминия, который сливается в экспериментальное устройство. При проведении экспериментов жидкий натрий находится в экспериментальном устройстве и поступает в него из специальной транспортной емкости. На рисунке 1 показана экспериментальная установка для проведения испытаний и ее конструктивная схема.

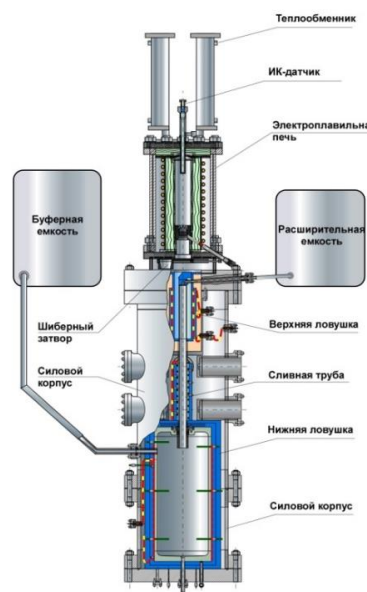


Рисунок 1. Экспериментальная установка EAGLE и ее конструктивная схема

В зависимости от объекта и целей исследования на установке «EAGLE» перед проведением экспериментов разрабатывается диаграмма нагрева компонентов расплава кориума в ЭПП. Необходимость проведения данной процедуры связана с тем, что в разных экспериментах могут использоваться как разная масса и состав шихты, так и начальная температура расплава кориума. В связи с этим, определение корректной диаграммы нагрева компонентов расплава кориума в ЭПП позволит повысить вероятность успешного проведения эксперимента и обеспечить требуемое качество проводимых исследований.

Наиболее эффективным вариантом, позволяющий разработать диаграмму нагрева перед проведением эксперимента является метод компьютерного моделирования. Компьютерное моделирование теплофизических процессов нагрева расплава в ЭПП позволяет:

1) Предварительно оценить температурные поля, установившиеся в процессе нагрева расплава кориума в ЭПП при заданном режиме нагревательного устройства. В том числе с целью недопущения нагрева элементов экспериментальной секции сверх допустимых температур.

2) Оценить характеристики нагревательного устройства, необходимые для установления необходимого температурного поля в конкретном эксперименте.

3) Провести анализ теплофизических процессов, происходящих в экспериментальной секции, исполь-

зуя результаты компьютерного моделирования и измеренные данные натурального эксперимента.

Таким образом, в настоящей статье представлено описание полученных результатов разработки теплофизической модели ЭПП установки «EAGLE» и ее валидации путем сравнения экспериментальных и расчетных данных.

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ЭПП И УСЛОВИЯ ПРОВЕДЕНИЯ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Для выбора режима получения расплава кориума необходимо было разработать и провести валидацию теплофизической модели тигля ЭПП установки «EAGLE» во время индукционного нагрева. Основной задачей расчета являлось проведение нестационарного теплофизического расчета температурного поля тигля ЭПП во время индукционного нагрева.

Для достижения данной задачи в расчете моделируется экспериментальная ситуация, когда методом индукционного нагрева происходит нагрев оксида алюминия массой 15 кг в графитовом тигле для получения расплава. Расчеты теплового состояния теплофизической модели были выполнены с использованием пакета прикладных программ ANSYS [7–9].

В силу симметрии ЭПП относительно центральной оси для моделирования теплообмена была выбрана двухмерная осесимметричная расчетная область. Разработанная теплофизическая модель и схема ЭПП представлена на рисунке 2.

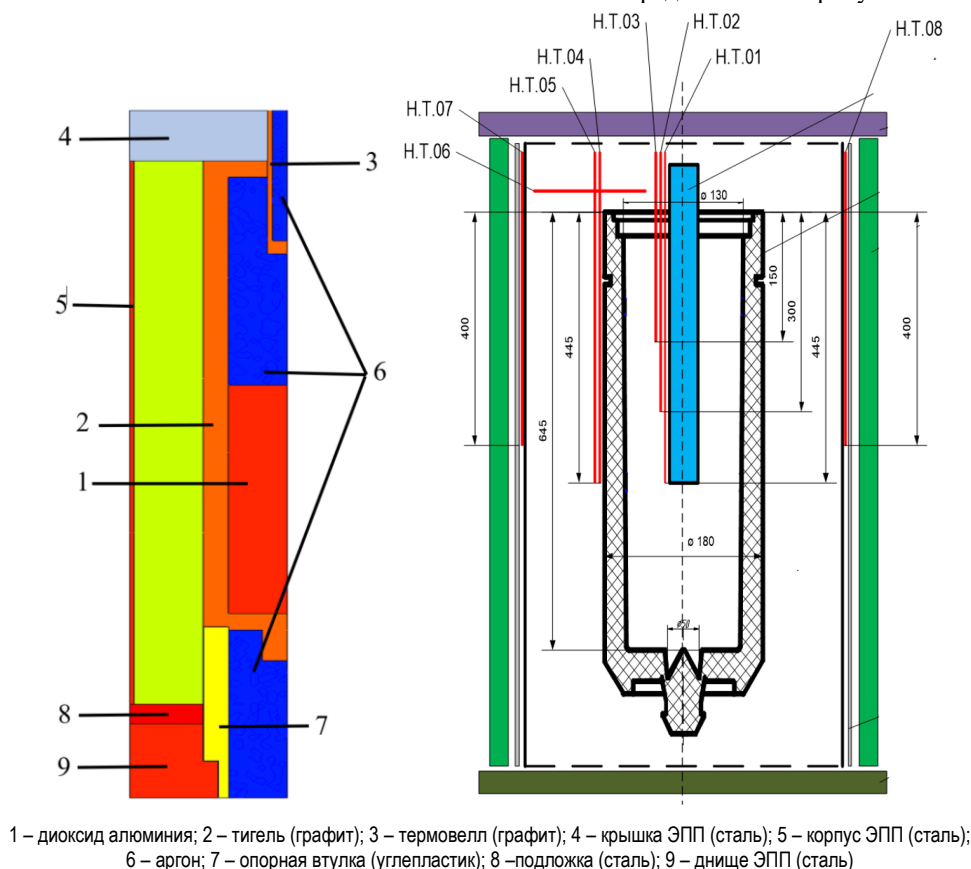


Рисунок 2. Схема и расчетная модель ЭПП установки «EAGLE»

Для сравнения результатов расчета с экспериментальными данными использовались значения температуры, полученные в результате проведения эксперимента на экспериментальном стенде «EAGLE» в контрольных точках Н.Т.01, Н.Т.04, Н.Т.07. Схема расположения контрольных точек и соответственно термопар во время эксперимента показана на рисунке 2.

Для проведения расчета были определены следующие граничные условия:

а) начальная температура элементов ЭПП и нагреваемого Al_2O_3 – 27 °С;

б) масса нагреваемого Al_2O_3 – 15 кг;

в) индукционный нагрев осуществлялся согласно диаграмме, которая соответствует диаграмме, реализованной во время проведения эксперимента и представлена на рисунке 3.

При этом, теплофизическая модель учитывает:

а) зависимость теплофизических свойств конструктивных элементов ЭПП и Al_2O_3 от температуры;

б) зависимость выделяемой энергии в графитовом тигле ЭПП от расчетного электрического КПД индуктора;

в) тепловые потоки, отводимые от водоохлаждаемых медной крышки и днища ЭПП во время индукционного нагрева.

Зависимость теплофизических свойств конструктивных элементов ЭПП от температуры использовалась согласно [10]. Расчет коэффициента полезного действия индуктора и коэффициента теплоотдачи с поверхности крышки и днища ЭПП установки «EAGLE» проводился согласно [11–12].

РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

На рисунке 4 приведено сравнение расчетных значений температуры в контрольных точках с экспериментальными значениями температуры. Сплошными линиями показаны экспериментальные значения температуры, штрихпунктирными линиями – расчетные значения температуры.

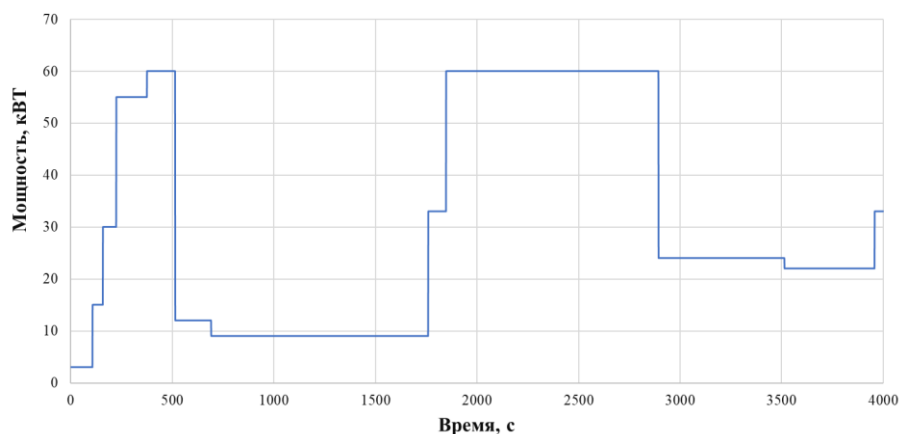


Рисунок 3. Диаграмма нагрева графитового тигля

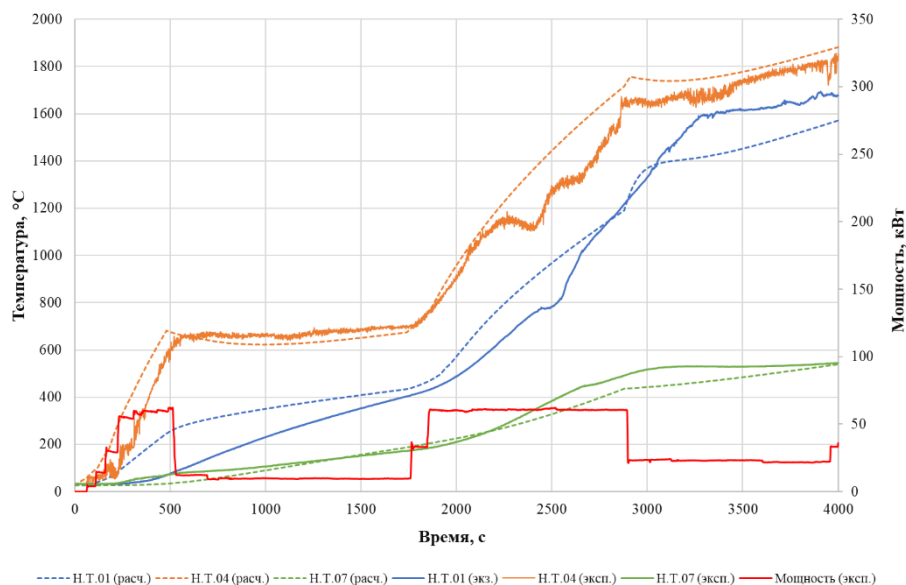


Рисунок 4. Экспериментальные и расчетные значения температуры

Сравнение расчетных и экспериментальных значений температуры в точках Н.Т.01, Н.Т.04 и Н.Т.07 показывает, что отклонения между ними составляют в среднем ~19%, 12% и 9% соответственно. Значительное отклонение в точке Н.Т.01 можно связать с неполными сведениями изменения теплофизических свойств графита плавильного тигля.

Средняя температура оксида алюминия в графитовом тигле составляет ~1750 °С после 4000 секунд индукционного нагрева, что меньше температуры его плавления. В то же время, получение расплава и его слив для проведения эксперимента было проведено путем дальнейшего индукционного нагрева. Расчет был проведен до этого момента времени в связи с выходом из строя или некорректной работой термопар при дальнейшем нагреве во время эксперимента.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В программе ANSYS FLUENT проведено моделирование процесса индукционного нагрева оксида алюминия в графитовом тигле установки «EAGLE» для получения расплава кориума. Нестационарный расчет проведен с целью разработки и валидации теплофизической модели ЭПП установки «EAGLE».

Анализ результатов нестационарного расчета показал хорошую согласованность с экспериментальными данными. В результате расчета определено, что отклонения между расчетными и экспериментальными значениями составляют в среднем ~19%, 12% и 9% соответственно. Средняя температура оксида алюминия в графитовом тигле составляет ~1750 °С после 4000 секунд индукционного нагрева.

Таким образом, основываясь на значениях относительных отклонений расчетных и экспериментальных данных, можно констатировать, что разработанная теплофизическая модель применима для проведения нестационарных расчетов изменения температуры в элементах ЭПП при индукционном нагреве. В связи с этим, разработанная теплофизическая модель ЭПП будет использована при разработке операционных программ будущих экспериментов на установке «EAGLE», в частности определении режимов нагрева оксида алюминия для получения требуемых характеристик расплава.

Финансирование

Данное исследование было выполнено при финансовой поддержке Министерства энергетики Республики Казахстан в рамках программно-целевого финансирования по научным, научно-техническим программам на 2024–2026 годы по теме «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» (ИРН проекта – BR24792713).

ЛИТЕРАТУРА

1. Journeau, C., Bouyer, V., Cassiaut-Louis, N. and et.al. SAFEST roadmap for corium experimental research in Europe // Proceedings of 24th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE24). Charlotte, North Carolina, June 26–30, 2016. <https://doi.org/10.1115/ICONE24-60916>
2. Bechta, S., Ma, W., Miasoedov, A. and et.al. On the EU-Japan roadmap for experimental research on corium behavior // Annals of Nuclear Energy. – 2019. – Vol. 124. – P. 541–547. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2018.10.019>
3. Васильев Ю.С., Вурим А.Д., Жданов В.С. и др. Экспериментальные исследования по моделированию процессов характерных для тяжелых аварий ядерных реакторов проведенные в ИАЭ // Вестник НЯЦ РК. – 2009. № 4. – С. 26–54.
4. Семенина А.В., Бакланова Ю.Ю., Вурим А.Д. Структурирование экспериментальных данных по высокотемпературному взаимодействию кориума с конструкционными материалами энергетического реактора в виде информационно-аналитической системы // Вестник НЯЦ РК. – 2021. – № 1. – С. 54–60. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-1-54-60>
5. Nazarbayev N.A., Shkolnik V.S., Baturbekov E.G. and et al. Scientific, Technical and Engineering Work to Ensure the Safety of the Former Semipalatinsk Test Site. – London. – 2017. – Vol. 3, P. 290.
6. Ильиных С.А., Сысалетин А.В., Ермаков В.А. и др. Модернизация информационно-управляющей системы экспериментального стенда «EAGLE» // Вестник НЯЦ РК. – 2019. – № 1(4). – С. 38–44. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2019-4-38-44>
7. ANSYS Fluent User's Guide, 15th ed.; ANSYS Inc.: Canonsburg, PA, USA, 2013, 2620.
8. Толеубеков К.О., Хажидинов А.С., Акаев А.С. Моделирование индукционного нагрева при имитации остаточного энерговыделения в кориуме при взаимодействии с жаропрочными материалами. // Вестник НЯЦ РК. – 2021. – № 1. – С. 9–14. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-1-9-14>
9. Скаков М.К., Бакланов В.В., Толеубеков К.О., Акаев А.С., Бекмуддин М.К., Градобоев А.В. Моделирование взаимодействия кориума с кандидатными металлическими материалами – охладителями в ловушке расплава легководного реактора // Вестник НЯЦ РК. – 2023. № 2. С. 49–57. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2023-2-49-57>
10. Чиркин В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. – М.: АТОМИЗДАТ. – 1968.
11. «Электро – термическое оборудование», справочник под общей редакцией Альтгаузена А.П. – М.: Энергия. – 1980.
12. Михеев М.А., Михеева И.М. Основы теплопередачи». – М.: Энергия. – 1977.

REFERENCES

1. Journeau, C., Bouyer, V., Cassiaut-Louis, N. and et.al. SAFEST roadmap for corium experimental research in Europe // Proceedings of 24th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE24). Charlotte, North Carolina, June 26–30, 2016. <https://doi.org/10.1115/ICONE24-60916>

2. Bechta, S., Ma, W., Miassoedov, A. and et.al. On the EU-Japan roadmap for experimental research on corium behavior // *Annals of Nuclear Energy*. – 2019. – Vol. 124. – P. 541–547. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2018.10.019>
3. Vasilev Yu.S., Vurim A.D., Jdanov V.S. et al. Experimental studies carried out in IAE on simulation of process typical for reactor severe accidents // *NNC RK Bulletin*. – 2009. – Issue 4(40). – P. 26–54. (In Rus.)
4. Semenina A.V., Baklanova Yu.Yu., Vurim A.D. Structuring experimental data on high-temperature interaction between corium and structural materials of power reactor as information-analytical system // *NNC RK Bulletin*. – 2021. – Issue 1. P. 54-60. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-1-54-60>
5. Nazarbayev N.A., Shkolnik V.S., Batyrbekov E.G. and et al. Scientific, Technical and Engineering Work to Ensure the Safety of the Former Semipalatinsk Test Site. – London. – 2017. – Vol. 3. – pp. 290.
6. Ilinykh S.A., Syssaletin A.V., Ermakov V.A. and et al. Modernization of the information management system of the “EAGLE” test bench // *NNC RK Bulletin*. – 2019. – Issue 4. P. 38–44. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2019-4-38-44>
7. ANSYS Fluent User’s Guide, 15th ed.; ANSYS Inc.: Canonsburg, PA, USA, 2013, 2620.
8. Toleubekov K.O., Khazhidinov A.S., Akaev A.S. Modeling of the induction heating for imitation decay heat in the corium during the interaction with heat-resistant materials // *NNC RK Bulletin*. – 2021. Issue 1. P. 9–14. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-1-9-14>
9. Skakov M.K., Baklanov V.V., Toleubekov K.O., Akaev A.S., Bekmuldin M.K., Gradoboev A.V. Modeling of the corium and metals – coolers interaction in a core catcher of a light water reactor // *NNC RK Bulletin*. – 2023. Issue 2. – P. 49–57. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2023-2-49-57>
10. Chirkin V.S., «Теплофизические свойства материалов ядерной техники». – Moscow.: ATOMIZDAT. – 1968.
11. Электро-термическое оборудование, справочник под общ. ред. ред. А.П. – Moscow: Энергия. – 1980.
12. Miheev M.A., Miheeva I.M. Osnovy teploperedachi. – Moscow: Energiya. – 1977.

НАТРИЙ ЖЫЛУТАСЫҒЫШЫ БАР ШАПШАҢ НЕЙТРОНДАРДАҒЫ РЕАКТОР КОРИУМЫНЫҢ ПРОТОТИПН АЛУ ҮШІН «EAGLE» ҚОНДЫРҒЫСЫНЫҢ ЭЛЕКТРЛІ БАЛҚЫТУ ПЕШІНІҢ ЖЫЛУ ФИЗИКА МОДЕЛІН ӘЗІРЛЕУ

А. С. Акаев, К. О. Төлеубеков*, М. К. Бекмүлдин, Г. Нурпаисова, С. Хасенова

ҚР ҰАО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Құрчатов, Қазақстан

** Байланыс үшін E-mail: toleubekov@nnc.kz*

Осы мақалада «EAGLE» қондырғысының электр балқыту пешінің температуралық өрісін модельдеу нәтижелері келтірілген. Модельдеу процесінде ANSYS бағдарламалық кешенінде екі өлшемді осимметриялық жылу-физикалық модель жасалды және температураның есептік мәндерін эксперименттік мәліметтермен салыстыру арқылы модель валидациясы жүргізілді. Модельді тексеру бақылау нүктелеріндегі температураның есептік және эксперименттік мәндерінің ауытқуы рұқсат етілген шектерден аспайтынын көрсетеді. Осылайша, әзірленген жылу-физикалық модельді «EAGLE» қондырғысында одан әрі эксперименттерді негіздеу кезінде пайдалануға болады.

Түйін сөздер: *кориум, индукциялық қыздыру, валидация, ANSYS, моделдеу, «EAGLE» қондырғысы.*

DEVELOPMENT OF A THERMOPHYSICAL MODEL OF THE ELECTRIC MELTING FURNACE OF THE “EAGLE” FACILITY FOR OBTAINING A CORIUM PROTOTYPE OF A FAST NEUTRON REACTOR WITH A SODIUM COOLANT

A. S. Akaev, K. O. Toleubekov*, M. K. Bekmuldin, G. Nurpairova, S. Khasanova

Branch “Institute of Atomic Energy” RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

** E-mail for contacts: toleubekov@nnc.kz*

This article presents the results of modeling of the temperature field of the electric melting furnace of the “EAGLE” facility. The two-dimensional axisymmetric thermophysical model was created in the ANSYS software and the model was validated by comparing the calculated temperature values with experimental data during modeling. Validation of the model shows that the deviations of the calculated and experimental temperature values at the control points do not exceed the permissible limits. Thus, the developed thermophysical model can be used to justify further experiments at the “EAGLE” facility.

Keywords: *corium, induction heating, validation, ANSYS, modeling, «EAGLE» facility.*

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-4-196-204>

УДК 502.51:539.16:504.5 (574.41)

СОВРЕМЕННЫЕ УРОВНИ РАДИОНУКЛИДНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ВОДНЫХ ОБЪЕКТОВ ПЛОЩАДКИ «ТЕЛЬКЕМ»

А. К. Айдарханова*, Н. В. Ларионова, А. С. Мамырбаева, Ж. Е. Тлеуканова, Т. Ю. Богатырева, Р. Г. Ермакова

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

* E-mail для контактов: almira@nnc.kz

В работе приводятся данные комплексных исследований уровней и характера распределения радионуклидного загрязнения в системе «донные отложения / почва - вода - растения» водных объектов площадки «Телькем» Семипалатинского испытательного полигона (СИП). Объектами исследования являлись воронки «Телькем-1» и «Телькем-2», образованные в результате экскавационных взрывов, заполненные водой. В рамках данных исследований проведен сопряженный отбор проб донных отложений, почвы, воды, растений, в которых проводилось определение содержания техногенных ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ и γ -излучающих радионуклидов. В результате установлено, что на текущий момент сохраняется высокий уровень радиоактивного загрязнения экосистемы водных объектов площадки «Телькем», как для донных отложений (для радионуклидов ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$), так и для воды (для ^{90}Sr). На основе полученных данных рассчитаны коэффициенты распределения (K_p) для системы «донные отложения - вода», а также коэффициенты накопления (K_{Hs-b}) для системы «донные отложения / почва - растения». Коэффициент распределения K_p для ^{90}Sr в среднем равен 10, K_p для $^{239+240}\text{Pu}$ – $3,7 \cdot 10^5$. Накопительная способность растений из донных отложений и почвы водных экосистем площадки «Телькем» по отношению к техногенным радионуклидам снижается в ряду $K_{Hs-b}^{90}\text{Sr} > K_{Hs-b}^{60}\text{Co} > K_{Hs-b}^{137}\text{Cs} > K_{Hs-b}^{152}\text{Eu} > K_{Hs-b}^{241}\text{Am} > K_{Hs-b}^{239+240}\text{Pu}$.

Ключевые слова: «Телькем», радионуклидное загрязнение, донные отложения, вода, растения, коэффициент распределения, коэффициент накопления.

ВВЕДЕНИЕ

В период с 1965 по 1988 гг. на территории бывшего СССР в рамках реализации государственной программы № 7 «Ядерные взрывы для народного хозяйства» было произведено 124 промышленных «мирных» ядерных взрыва с подрывом 135 зарядов по данным профессора В.А. Логачева [1]. Из них 39 взрывов с подрывом 46 зарядов – на территории Казахской ССР, в том числе 7 взрывов (9 зарядов) – на Семипалатинском испытательном полигоне (СИП). В то же время академик А.В. Яблоков приводит другие цифры: в 169 «мирных» ядерных взрывах было подорвано 186 ядерных устройств, в том числе, на территории Казахстана – 81 «мирный» ядерный взрыв (взорвано 95 взрывных устройств, включая СИП) [2].

Цели преследовались самые разные: сейсморазведка земной коры и поиск полезных ископаемых; интенсификация добычи нефти и газа и создание подземных резервуаров для их хранения; перекрытие аварийных газовых фонтанов; дробление рудных пластов; предотвращение выброса метана в угольных шахтах; захоронение отходов нефтехимического производства; выброс грунта для строительства каналов, плотин, водохранилищ и т.д.

Тем не менее, в экологическом отношении каждый «мирный» ядерный взрыв, независимо от целей его использования, представляет собой значительную опасность для окружающей среды и человека, так как является источником радиоактивного загрязнения. Объекты проведения ядерных взрывов в мир-

ных целях являются радиационно-неблагополучными из-за наличия радионуклидного загрязнения территорий или наличия приповерхностных хранилищ радиоактивных отходов («Кристалл», «Тайга», «Глобус-1» и т.д.) [3–6]. Несмотря на то, что на многих объектах мирных ядерных взрывов проведены мероприятия по реабилитации и дезактивации загрязненных территорий, на текущий момент они могут представлять радиоэкологическую опасность при выходе техногенных радионуклидов на земную поверхность с водой или добываемой продукцией («Вега», «Кама-1», «Гелий» и т.д.) [7, 8]. Также существуют объекты, на которых вынос радионуклидов по природным факторам маловероятен и возможен в основном при бурении в зону взрыва («Агат», «Пирит» и т.д.) [9, 10].

К числу ядерных испытаний, проводимых в «мирных» целях, относятся и экскавационные взрывы на площадке «Телькем». В ходе проведения данных экспериментов отрабатывались технологии сооружения каналов, которые можно было бы использовать для отвода воды из арктических районов страны в бассейн реки Волга и в Каспийское море. Согласно литературным источникам, были получены данные, необходимые для планирования работ по созданию канала Печора-Кама [11].

Испытательная площадка «Телькем» расположена в юго-восточной части СИП (рисунок 1а). На ее территории проведено два подземных ядерных испытания с выбросом грунта: одиночный взрыв «Телькем-1» и групповой «Телькем-2».

Первое испытание – это произведенный 21 октября 1968 г. на глубине 31,4 м одиночный подземный ядерный взрыв с выбросом грунта «Телькем-1» мощностью 0,24 кт. Целью проведения этого взрыва было изучение параметров механического и радиационного факторов для последующего использования полученных данных при подготовке и проведении группового взрыва наружного действия. В результате взрыва образовалась воронка глубиной 21 м и диаметром 80 м от дневной поверхности, которая через несколько дней после взрыва заполнилась подземными водами [1].

Испытание «Телькем-2» (12 ноября 1968 г.) заключалось в подрыве 3-х зарядов мощностью по 0,24 кт, размещенных в скважинах глубиной 31,4 м каждая, расстояние между скважинами составляло 40 м. В результате взрыва образовалась траншейная выемка глубиной 22 м с навалом выброшенной породы, которая вскоре также заполнилась подземными водами. Уровни радиации на гребне навала грунта после взрывов составляли 0,20–0,30 мЗв/ч [1].

Место проведения экскавационных взрывов расположено в пределах следа радиоактивных выпадений от наземного испытания, проведенного на территории площадки «Опытное поле» 12 августа 1953 г. [12].

Ранее проведенные исследования радиационной ситуации на площадке «Телькем» выполнены в рамках различных проектов при поддержке международных организаций, таких как МНТЦ, НАТО и др., а также в рамках бюджетных программ, в том числе в ходе реализации программы по комплексному обследованию территории СИП с целью передачи земель в народнохозяйственный оборот [13–15]. Результаты исследований показали, что максимальное содержание радионуклидов в почве, достигающие десятки тысяч Бк/кг по ^{137}Cs и ^{241}Am , находится на отвалах. Удельная активность радионуклидов в почвах заметно понижается с увеличением расстояния от эпицентра. Основным загрязняющим радионуклидом поверхностных вод является ^{90}Sr [3, 16].

Целью данных исследований являлась оценка радиоактивного загрязнения экосистемы водных объектов площадки «Телькем». В ходе работы определены уровни и характер распределения радионуклидного загрязнения в системе «донные отложения / почва – вода – растения» и рассчитаны параметры перехода [17] – коэффициенты распределения (K_p) для системы «донные отложения - вода», и коэффициенты накопления (K_{HS-b}) для системы «донные отложения / почва - растения».

1. МЕТОДОЛОГИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ

1.1. Методология проведения исследований

Объектами исследования являлись компоненты экосистемы воронок площадки «Телькем», которые являются водными объектами с частично восстановленным растительным покровом. «Телькем-1» – это воронка округлой формы, заполненная водой, с диаметром 80 м и глубиной 15 м (рисунок 1б). В воде от береговой линии на расстоянии до 2–2,5 метров в глубину произрастает валлиснериево-рдестовое сообщество: рдест гребенчатый (*Potamogeton pectinatus*) и валлиснерия обыкновенная (*Vallisneria vulgaris*). По кромке берега произрастает тростник южный (*Phragmites australis*), камыш озерный (*Schoenoplectus lacustris*) и гребенщик ветвистый (*Tamarix ramosissima*) высотой порядка 2 м.

«Телькем-2» – вытянутая по форме воронка длиной 120 м, шириной 50 м и глубиной 10 м (рисунок 1в). Воронка характеризуется небольшим количеством растений, внутри водоем без растений, на берегу произрастает гребенщик ветвистый (*Tamarix ramosissima*) высотой до 5 м.

Для проведения исследований на воронке «Телькем-1» заложено 3 участка отбора проб, на воронке «Телькем-2» – 2 участка (рисунок 1б, в). Количество исследуемых участков было ограничено вследствие того, что на обеих воронках склоны навалов круто спускаются к поверхности воды и затрудняют проход по периметру объекта.

Для определения характера распределения радионуклидного загрязнения на каждом участке проводился сопряженный отбор проб донных отложений/почвы, воды и растений.

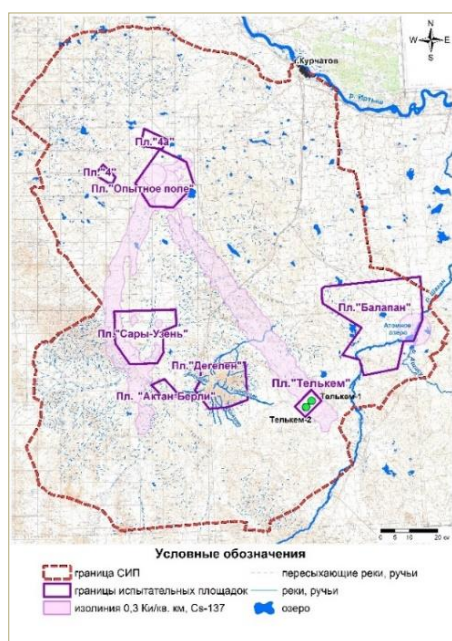
В воронке «Телькем-1» отбирались высшие водные растения, принадлежащие к 2 экологическим группам в зависимости от места их произрастания:

- *водные* – это укорененные, погруженные в толщу воды растения – рдест гребенчатый и валлиснерия обыкновенная;

- *воздушно-водные* – это укорененные растения с надводными листьями, корни и нижняя часть стебля которых находятся в воде – тростник южный и камыш озерный.

Для этих растений рассматривалась система «донные отложения - растения».

Также в рамках данных исследований отбирались прибрежные растения: гребенщик ветвистый, произрастающий в прибрежной зоне обеих воронок, и соловка голая, произрастающая в прибрежной зоне воронки «Телькем-2». Для данной группы растений для дальнейших исследований дополнительно отбиралась почва и рассматривалась система «почва - растения».



а)



б)



в)

Рисунок 1. Семипалатинский испытательный полигон (а), воронка «Телькем-1» (б), воронка «Телькем-2» (в)

1.2. Отбор проб

Отбор проб донных отложений и воды проводился на расстоянии порядка 30–40 см от береговой линии, при этом глубина водоема в точке отбора составляла 50–60 см. Отбор донных отложений проводился на глубину 0–10 см [18]. Пробы воды отбирались из придонного слоя объемом 10 л [19]. У растений отбиралась наземная часть. Проба почвы отбиралась методом конверта с площади $\approx 1 \text{ м}^2$.

Предварительная подготовка проб заключалась в следующем. Пробы донных отложений и почвы высушивались, просеивались и гомогенизировались. Пробы воды объемом 10 л концентрировались с помощью метода соосаждения: $^{239+240}\text{Pu}$ с гидроксидом железа (III), ^{90}Sr с карбонатом кальция, ^{137}Cs с гекса-цианоферратом меди [20]. Пробы растений промывались, измельчались, высушивались и озолялись.

1.3. Проведение измерений

В отобранных пробах проводилось определение содержания ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ и γ -излучающих радионуклидов (^{137}Cs , ^{241}Am , ^{152}Eu и ^{60}Co).

Во всех полученных образцах с помощью γ -спектрометрических измерений определялось содержание γ -излучающих радионуклидов [21]. Определение содержания ^{90}Sr выполнялось β -спектрометрическим методом по дочернему ^{90}Y после предварительного радиохимического выделения. Определение содержания $^{239+240}\text{Pu}$ проводилось с помощью α -спектрометрического метода после экстракционно-хроматографического выделения и электролитического осаждения [22].

Для проведения γ -спектрометрических измерений использовались γ -спектрометры компании Ortec, состоящие из германиевых детекторов, импульсных анализаторов и соответствующего программного обеспечения. Для измерения проб растений использовался γ -спектрометр с детектором колодезного типа.

Определение содержания ^{90}Sr проводилось с использованием жидкостно-сцинтилляционного β -спектрометра «TRI CARB 2900 TR». Для контроля химического выхода ^{90}Sr при проведении анализов использовался трассер ^{85}Sr .

Определение содержания $^{239+240}\text{Pu}$ проводилось с использованием α -спектрометра фирмы Canberra Co, состоящего из вакуумных ячеек, детекторов α -излучения, импульсного анализатора и программного обеспечения GENIE2000. Для контроля химического выхода $^{239+240}\text{Pu}$ при проведении анализов использовался трассер ^{242}Pu .

Также проведен анализ химического состава воды [23] для оценки его влияния на распределение радионуклидного загрязнения в системе «донные отложения - вода».

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

2.1. Уровни радионуклидного загрязнения водных объектов площадки «Телькем»

Содержание γ -излучающих радионуклидов в донных отложениях воронок площадки «Телькем» представлены в таблице 1, а их содержание в воде находится ниже предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения ($<0,01 \text{ Бк/кг}$).

Таблица 1. Содержание γ -излучающих радионуклидов в донных отложениях

Место отбора		Удельная активность, Бк/кг			
		^{137}Cs	^{241}Am	^{152}Eu	^{60}Co
Телькем-1	уч. 1	570±55	1000±100	15±3	<3
	уч. 2	150±15	450±45	6±1	<3
	уч. 3	2400±250	7100±700	35±4	8±1
Телькем-2	уч. 4	370±30	1650±200	9±3	<3
	уч. 5	2100±200	3700±300	10±3	<3

Согласно полученным данным, γ -излучающие радионуклиды распределены неравномерно по периметру воронок, в зависимости от участка отбора изменяются от $n \cdot 10^2$ до $n \cdot 10^3$ Бк/кг для ^{137}Cs и ^{241}Am , и от $n \cdot 10^0$ до $n \cdot 10^1$ Бк/кг для ^{152}Eu . Максимально загрязненным γ -излучающими радионуклидами является участок 3 воронки «Телькем-1», где фиксируется численное значение ^{60}Co .

Далее данные о содержании γ -излучающих радионуклидов в донных отложениях будут использованы при расчете параметров накопления водных и воздушно-водных растений.

Содержание техногенных радионуклидов ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях и воде представлены в таблице 2. На основе полученных данных рассчитаны коэффициенты распределения K_p , как отношение содержания (удельной активности) радионуклида в донных отложениях к содержанию (удельной активности) в воде. Коэффициенты распределения K_p , также представлены в таблице 2.

Содержание радионуклидов ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях на всех участках исследуемых объектов находятся примерно на одном уровне: содержание ^{90}Sr в донных отложениях – $n \cdot 10^2$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях – $n \cdot 10^4$ Бк/кг. По содержанию радионуклидов ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях максимально загрязненным также является участок 3 воронки «Телькем-1».

Содержание $^{239+240}\text{Pu}$ в воде на всех участках исследуемых объектов находятся примерно на одном

уровне – $n \cdot 10^{-1}$ Бк/кг. Но содержание ^{90}Sr в воде воронки «Телькем-2» ($n \cdot 10^2$ Бк/кг) на порядок превышает содержание в воде воронки «Телькем-1» ($n \cdot 10^1$ Бк/кг). Это отражается на K_p , который для ^{90}Sr выше примерно на порядок для воронки «Телькем-1», чем для воронки «Телькем-2», и изменяется от $1,3 \cdot 10^0$ до $2,5 \cdot 10^1$. Для $^{239+240}\text{Pu}$ K_p остается на одном уровне для обеих воронок – от $2,2 \cdot 10^5$ до $6,5 \cdot 10^5$.

Химический состав воды исследуемых объектов представлен в таблице 3.

Анализ химического состава вод воронок площадки «Телькем» показывает, что воды по уровню pH являются слабощелочными, по степени жесткости – очень жесткими, по степени минерализации вода воронки «Телькем-2» – солоноватой, «Телькем-1» – соленой. Вероятно, именно степень минерализации воды влияет на переход ^{90}Sr из донных отложений в воду. Минерализация воды воронки «Телькем-1» составляет 16,3 г/л, что в 2,5 раза выше, чем минерализация воды воронки «Телькем-2» – 6,4 г/л. Соответственно, содержание макрокомпонентов катионов Ca^{2+} и Mg^{2+} , аналогов Sr, в 2–2,5 раза выше в воде воронки «Телькем-1», что препятствует переходу ^{90}Sr в воду. Поэтому, содержание ^{90}Sr в воде воронки «Телькем-1» на порядок ниже, чем в воде воронки «Телькем-2».

Также, для оценки параметра накопления радионуклидов прибрежными растениями определено содержание техногенных радионуклидов в почве в местах их произрастания, которое представлено в таблице 4.

Как видно из таблицы 4, содержание радионуклидов в почве находится примерно на том же уровне или незначительно превышает содержание в донных отложениях на тех же участках исследования. Лишь в ряде случаев содержание радионуклидов в почве на порядок превышает содержание в донных отложениях: ^{241}Am на участке 2 воронки «Телькем-1», ^{137}Cs на участке 4 воронки «Телькем-2», и $^{239+240}\text{Pu}$ на обоих участках воронки «Телькем-2».

 Таблица 2. Содержание техногенных радионуклидов ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях и воде, и коэффициенты распределения K_p

Место отбора		Удельная активность ^{90}Sr , Бк/кг		K_p	Удельная активность $^{239+240}\text{Pu}$, Бк/кг		K_p
		Донные отложения	Вода		Донные отложения	Вода	
Телькем-1	уч. 1	380±60	32±5	11,9	$(2,8 \pm 0,1) \times 10^4$	$0,13 \pm 0,01$	$2,2 \cdot 10^5$
	уч. 2	260±40	29±4	8,9	$(2,6 \pm 0,1) \times 10^4$	$0,12 \pm 0,01$	$2,2 \cdot 10^5$
	уч. 3	710±110	28±4	25,4	$(9,9 \pm 0,5) \times 10^4$	$0,21 \pm 0,02$	$4,7 \cdot 10^5$
Телькем-2	уч. 4	140±30	110±10	1,3	$(3,9 \pm 0,2) \times 10^4$	$0,17 \pm 0,01$	$2,3 \cdot 10^5$
	уч. 5	400±60	130±10	3,1	$(9,8 \pm 0,6) \times 10^4$	$0,15 \pm 0,01$	$6,5 \cdot 10^5$

Таблица 3. Химический состав воды водных объектов площадки «Телькем»

Место отбора	pH	Минерализация, мг/дм ³	Жесткость, ммоль/дм ³	Содержание катионов, мг/дм ³			Содержание анионов, мг/дм ³		
				$\text{Na}^+ + \text{K}^+$	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Cl^-	HCO_3^-	SO_4^{2-}
Телькем-1	7,7	16300	100	4120	550	920	6060	2420	3470
Телькем-2	7,9	6400	44	1350	300	350	2210	380	1630

Таблица 4. Содержание техногенных радионуклидов в почве

Место отбора		Удельная активность, Бк/кг					
		^{137}Cs	^{241}Am	^{152}Eu	^{60}Co	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$
Телькем-1	уч. 2	860±90	3100±300	25±3	4±1	190±30	$(4,4\pm0,5)\cdot 10^4$
Телькем-2	уч. 4	600±60	1300±150	55±6	6±1	200±30	$(1,7\pm0,1)\cdot 10^5$
	уч. 5	1900±200	7000±700	60±6	9±1	280±40	$(1,4\pm0,1)\cdot 10^5$

Таблица 5. Содержание техногенных радионуклидов в растениях

Место отбора		Вид растения		Удельная активность, Бк/кг					
				^{137}Cs	^{241}Am	^{152}Eu	^{60}Co	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$
Телькем-1	уч. 3	водные	рдест гребенчатый	690±140	$(1,3\pm0,3)\cdot 10^3$	5,1±1,0	2,7±0,5	$(5,3\pm0,8)\cdot 10^3$	$(1,5\pm0,1)\cdot 10^4$
	уч. 3		валлиснерия обыкновенная	$(1,6\pm0,3)\cdot 10^3$	$(1,0\pm0,2)\cdot 10^3$	3,9±0,8	4,4±0,9	$(5,4\pm0,8)\cdot 10^3$	$(1,6\pm0,1)\cdot 10^4$
	уч. 1	воздушно-водные	тростник южный	<0,2	<0,2	<0,1	<0,1	260±40	150±10
	уч. 2		камыш озерный	<0,2	<0,1	<0,2	<0,1	390±60	8,2±0,7
	уч. 3		камыш озерный	<0,1	<0,1	<0,2	<0,1	68±10	27±4
	уч. 2	прибрежные	гребенщик ветвистый	10±1	<2	<0,6	<0,3	690±100	5,1±1,2
Телькем-2	уч. 4		солодка голая	<2	<1	<0,2	<0,1	600±90	110±10
	уч. 5		гребенщик ветвистый	3±1	7±1	<0,3	<0,2	430±60	11±2

2.2. Характер радионуклидного загрязнения растений водных объектов площадки «Телькем»

Содержание техногенных радионуклидов в растениях водных объектов площадки «Телькем» представлено в таблице 5. Здесь и далее все данные о содержании техногенных радионуклидов в растениях даны на сухую массу растений.

Максимальное радиоактивное загрязнение отмечается для водных растений, произрастающих на участке 3. Данный участок характеризовался максимально загрязненными донными отложениями по всем техногенным радионуклидам.

Наибольшие значения удельной активности в растениях в целом отмечаются для ^{90}Sr от 68 ± 10 Бк/кг до $(5,4\pm 0,8)\cdot 10^3$ Бк/кг. Содержание $^{239+240}\text{Pu}$ фиксируется во всех исследованных образцах и составляет от $5,1\pm 1,2$ Бк/кг до $(1,6\pm 0,1)\cdot 10^4$ Бк/кг. Численные значения содержания ^{152}Eu и ^{60}Co зафиксированы только в образцах водных растений на уровне от $3,9\pm 0,8$ Бк/кг до $5,1\pm 1,0$ Бк/кг для ^{152}Eu и от $2,7\pm 0,5$ Бк/кг до $4,4\pm 0,9$ Бк/кг для ^{60}Co . В образцах двух других групп растений их содержание находится ниже предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Численные значения содержания ^{137}Cs и ^{241}Am также зафиксированы только в образцах водных растений на уровне от 690 ± 140 Бк/кг до $(1,6\pm 0,3)\cdot 10^3$ Бк/кг для ^{137}Cs и на уровне $(1,3\pm 0,3)\cdot 10^3$ Бк/кг для ^{241}Am . Также ^{137}Cs и ^{241}Am единично зафиксированы на других участках в

образцах гребенщика ветвистого на уровне 10 ± 1 Бк/кг и 7 ± 1 Бк/кг соответственно. Вероятно, это связано с тем, что гребенщик ветвистый – это кустарник, поэтому содержание радионуклидов в образцах данного растения может характеризовать многолетнее накопление.

На основе полученных количественных данных рассчитаны коэффициенты накопления ($K_{\text{Hs-b}}$), как отношение содержания (удельной активности) радионуклидов в растениях к содержанию (удельной активности) в донных отложениях для водных и воздушно-водных растений, а для прибрежных растений – как отношение содержания радионуклидов в растениях к содержанию в почве. Диапазоны значений $K_{\text{Hs-b}}$ представлены в таблице 6.

Согласно полученным данным, $K_{\text{Hs-b}}$ для водных растений выше на 1–3 порядка, чем для воздушно-водных и прибрежных растений. Исключение составляет радионуклид ^{90}Sr , для которого $K_{\text{Hs-b}}$ находятся примерно на одном уровне для всех групп растений, но, тем не менее, для водных растений в несколько раз (4–7) выше, чем для двух других групп растений. Это свидетельствует о том, что водные растения более интенсивно накапливают в себе техногенные радионуклиды, чем воздушно-водные и прибрежные растения.

В целом, накопительная способность растений из донных отложений и почвы водных экосистем по отношению к техногенным радионуклидам снижается в ряду $K_{\text{Hs-b}}^{90}\text{Sr} > K_{\text{Hs-b}}^{60}\text{Co} > K_{\text{Hs-b}}^{137}\text{Cs} > K_{\text{Hs-b}}^{152}\text{Eu} > K_{\text{Hs-b}}^{241}\text{Am} > K_{\text{Hs-b}}^{239+240}\text{Pu}$.

Таблица 6. Диапазоны значений коэффициентов накопления (K_{Hs-b}) для трех групп растений

Группы растений	K_{Hs-b}					
	^{137}Cs	^{241}Am	^{152}Eu	^{60}Co	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$
водные	<u>0,48 (n=2)*</u> 0,29–0,67	<u>0,16 (n=2)</u> 0,14–0,18	<u>0,13 (n=2)</u> 0,11–0,14	<u>0,45 (n=2)</u> 0,34–0,55	<u>7,6 (n=2)</u> 7,5–7,6	<u>0,16 (n=2)</u> 0,15–0,16
воздушно-водные	–	–	–	–	<u>0,76 (n=3)</u> 0,1–1,5	<u>0,0075 (n=3)</u> $2,7 \cdot 10^{-4}$ – $1,5 \cdot 10^{-2}$
прибрежные	<u>0,0068 (n=3)</u> $3,3 \cdot 10^{-4}$ – $1,2 \cdot 10^{-2}$	<u>0,0011 (n=1)</u> –	–	–	<u>2,4 (n=3)</u> 1,5–3,0	<u>0,00028 (n=3)</u> $7,8 \cdot 10^{-5}$ – $6,5 \cdot 10^{-4}$
Средние K_{Hs-b}	0,24	0,11	0,13	0,45	3,1	0,042

Примечание: * – в числителе – среднее значение, в знаменателе – область значений, в скобках – количество.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Несмотря на то, что экскавационные взрывы в «мирных» целях на площадке «Телькем» проведены более 55 лет назад, высокий уровень радиоактивного загрязнения экосистемы водных объектов площадки сохраняется до сегодняшнего дня, как для донных отложений (^{137}Cs , ^{241}Am , ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$), так и для воды (^{90}Sr). А по содержанию $^{239+240}\text{Pu}$ донные отложения и почвы прибрежной зоны воронок можно отнести к категории радиоактивных отходов.

Коэффициенты распределения K_p для $^{239+240}\text{Pu}$ составляют $n \cdot 10^5$, для γ -излучающих радионуклидов K_p не получены, так как их содержание в воде находится ниже предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Из этого следует, что большая часть данных радионуклидов в системе «донные отложения - вода» сосредоточена в донных отложениях. В отношении ^{90}Sr , для которого в некоторых случаях получен K_p равный $n \cdot 10^0$, то в таком водном объекте ^{90}Sr может содержаться в сопоставимых количествах как в донных отложениях, так и в воде.

Полученные K_{Hs-b} для водных растений выше на 1–3 порядка чем для воздушно-водных и прибрежных растений. Это может свидетельствовать о том, что водные растения интенсивнее накапливают техногенные радионуклиды, чем воздушно-водные и прибрежные растения. Исключение составляет радионуклид ^{90}Sr , для которого K_{Hs-b} находятся примерно на одном уровне для всех видов растений.

Таким образом, γ -излучающие радионуклиды и $^{239+240}\text{Pu}$ могут равномерно распределяться в системе «донные отложения - водные растения», но для систем «донные отложения - вода» и «донные отложения - воздушно-водные растения» их основное содержание сосредоточено в донных отложениях. Тогда как ^{90}Sr может равномерно распределяться во всех компонентах системы «донные отложения / почва - вода - растения», независимо от вида растений, что еще раз подчеркивает его высокую миграционную способность и биодоступность.

Данные исследования финансировались Министерством энергетики Республики Казахстан в рамках научно-технической программы BR24792713 «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан».

ЛИТЕРАТУРА

1. Мирные ядерные взрывы: обеспечение общей и радиационной безопасности при их проведении / под рук. проф. В.А. Логачева – М.: Изд.АТ, 2001 – С. 265–271.
2. Яблоков, А.В. Миф о безопасности и эффективности мирных подземных ядерных взрывов. – М.: ЦЭПР, 2003. – 176 с.
3. Касаткин, В.В. Объекты ядерных взрывов в Якутии: реабилитация и современное состояние / Касаткин В.В., Ильичев В.А., Латышев В.Е., Мамонов Б.П. // Безопасность окружающей среды: Реабилитация радиационно-загрязненных территорий и объектов, 2009 – № 3. <http://www.atomic-energy.ru/articles/2011/12/21/29710>
4. Голубов, Б.Н. Подземный ядерный взрыв «Глобус-1» и дальняя миграция его радионуклидов к подземным источникам питьевого водоснабжения Кинешемского района Ивановской области / Голубов Б.Н., Сапожников Ю.А. // Электронное научное издание Альманах Пространство и Время. – 2016. – Т. 13. – Вып. 1.
5. Касаткин, В.В. Экспертная оценка радиационного риска объектов мирных ядерных взрывов (МЯВ) на основе выбранных эмпирических критериев / Касаткин В.В., Ильичев В.А., Камнев Е.Н., Касаткин А.В. // Горный информационно-аналитический бюллетень (научно-технический журнал). – 2013. – № 8 – С.198–201.
6. Артамонова, С.Ю. Техногенные радионуклиды в природных водах районов мирных подземных ядерных взрывов «Кратон-3» и «Кратон-4» / Геоэкология. Инженерная геология. Гидрогеология. Геоэкология. – 2013, – № 5. – С. 417–428.
7. Чуйков, Ю.С. Объект «Вега» и последствия ядерных взрывов в мирных целях (обзор) / Чуйков Ю.С., Досмухамедова Г.Г. // Астраханский вестник экологического образования. – 2006. – № 1–2 (8–9). – С. 46–71.
8. Стрючков, С.А. Мирные ядерные взрывы Таймыра / Стрючков С.А. – URL: <https://goarctic.ru/work/mirnyeyadernye-vzryvy-taymyra/> (дата обращения 22.11.2024)
9. Голубов, Б.Н. Новые данные о радиационных и длительных геодинамических последствиях подземного ядерного взрыва «Горизонт-4» (кряж Чекановского, Якутия) / Голубов Б.Н., Ушницкий В.Е. // Вестник НЯЦ РК. – 2008. – № 1. – С. 33–43.
10. Артамонова, С.Ю. Современная радиозоологическая ситуация на объекте мирного подземного ядерного взрыва «Кратон-3» (1978 г.) в Якутии / Астраханский вестник экологического образования. – 2016. – № 3 (37). – С. 14–24.
11. Актуальные вопросы радиозоологии Казахстана [Оптимизация исследований территорий Семипалатинско-

- го испытательного полигона с целью их передачи в хозяйственный оборот] / под рук. С. Н. Лукашенко. – Павлодар: Дом печати, 2015. – Вып. 5. – С. 90–93 – ISBN 978-601-7112-99-8.
12. Лукашенко С.Н. Радиоэкологическое состояние «Юго-Восточной» части территории СИП / Лукашенко С.Н., Стрильчук Ю.Г., Яковенко Ю.Ю. и др. // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2014–2016 г.] / под ред. Э.Г. Батырбекова, С.Н. Лукашенко – Павлодар: Дом печати, 2017. – Т. 1. – Вып. 6. – С. 11–90. – ISBN 978-601-7844-53-0.
 13. Разработка основ и выбор технологий ликвидации поверхностного загрязнения и способов ограничения вторичного загрязнения территории Семипалатинского Испытательного Полигона: заключительный технический отчет по Проекту МНТЦ К-337 / Институт ядерной физики НЯЦ РК (ИЯФ НЯЦ РК); С. Хажебер. – Алматы: ИЯФ НЯЦ РК, 2003.
 14. Изучение радиологической ситуации в районе п. Саржал на Семипалатинском испытательном полигоне: заключительный отчет по проекту NATO Sfp-976046(99) / Н. Прист, М. Буркитбаев, О. Артемьев, С. Н. Лукашенко, П. Митчелл. – 2003.
 15. Материалы комплексного экологического обследования «юго-восточной» части территории СИП, район площадок «Балапан», «Дегелен», «Телькем». / Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК; рук. С. Н. Лукашенко – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2013. – 341 с.
 16. Кабдыракова А.М. Распределение радионуклидов в гранулометрических фракциях почвы в местах экскавационных ядерных взрывов на площадках «Телькем» на Семипалатинском испытательном полигоне / Кабдыракова А.М., Кундузбаева А.Е., Лукашенко С.Н. и др. // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2014–2016 г.] / под ред. Э.Г. Батырбекова, С.Н. Лукашенко – Павлодар: Дом печати, 2017. – Т.1. – Вып. 6. – С. 306–317.
 17. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports Series No. 472, IAEA, Vienna, 2010 – 197 p.
 18. ГОСТ 17.1.5.01.-80. Гидросфера. Общие требования к отбору проб донных отложений водных объектов для анализа на загрязненность. Москва, 1984 г.
 19. СТ РК ГОСТ 51592-2003. Вода. Общие требования к отбору проб / Утвержден и введен в действие приказом Комитета по стандартизации, метрологии и сертификации Министерства индустрии и торговли Республики Казахстан 07 ноября 2003 года № 380.
 20. Методика определения содержания искусственных радионуклидов плутония-(239+240), стронция-90 и цезия-137 в природных водах методом концентрирования. Алматы, 2001 г.
 21. МИ 2143-91 № 5.06.001.98 Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре. Рекомендация. Государственная система обеспечения единства измерений. – Введ. 1998-06-02. – 1991. – 17 с.
 22. Методика определения изотопов плутония-(239+240), стронция-90 и америция-241 в объектах окружающей среды (почвы, растения, природные воды) / № 06-7-98 от 04 марта 1998 г. – Алматы: Алматинское ГП «ЦСМС», 1998.
 23. ГОСТ 26449.1-85 Установки дистилляционные опреснительные стационарные. Методы химического анализа соленых вод. ГОСТ 26449.1-85. Москва, 1987.

REFERENCES

1. Mirnye yadernye vzryvy: obespechenie obshchey i radiatsionnoy bezopasnosti pri ikh provedenii / pod ruk. prof. V.A. Logacheva – MOSCOW.: Izd.AT, 2001 – P. 265–271.
2. Yablokov, A.V. Mif o bezopasnosti i effektivnosti mirnykh podzemnykh yadernykh vzryvov. – Moscow.: TsEPR, 2003. – 176 p.
3. Kasatkin, V.V. Ob"ekty yadernykh vzryvov v Yakutii: reabilitatsiya i sovremennoe sostoyanie / Kasatkin V.V., Il'ichev V.A., Latyshev V.E., Mamonov B.P. // Bezopasnost' okruzhayushchey sredy: Reabilitatsiya radiatsionno-zagryaznennykh territoriy i ob"ektov, 2009 – No. 3 <http://www.atomic-energy.ru/articles/2011/12/21/29710>
4. Golubov, B.N. Podzemnyy yadernyy vzryv «Globus-1» i dal'naya migratsiya ego radionuklidov k podzemnym istochnikam pit'evogo vodosnabzheniya Kineshemskogo rayona Ivanovskoy oblasti / Golubov B.N., Sapozhnikov Yu.A. // Elektronnoe nauchnoe izdanie Al'manakh Prostranstvo i Vremya. – 2016. – Т. 13. – Issue 1.
5. Kasatkin, V.V. Ekspertnaya otsenka radiatsionnogo riska ob"ektov mirnykh yadernykh vzryvov (MYaV) na osnove vybrannykh empiricheskikh kriteriev / Kasatkin V.V., Il'ichev V.A., Kamnev E.N., Kasatkin A.V. // Gornyy informatsionno-analiticheskiy byulleten' (nauchno-tehnicheskii zhurnal). – 2013. – No. 8 – P.198–201.
6. Artamonova, S.Yu. Tekhnogennye radionuklidy v prirodnykh vodakh rayonov mirnykh podzemnykh yadernykh vzryvov «Kraton-3» i «Kraton-4» / Geoekologiya. Inzhenernaya geologiya. Gidrogeologiya. Geokriologiya. – 2013, – No. 5. – P. 417–428.
7. Chuykov, Yu.S. Ob"ekt «Vega» i posledstviya yadernykh vzryvov v mirnykh tselyakh (obzor) / Chuykov Yu.S., Dosmukhamedova G.G. // Astrakhanskiy vestnik ekologicheskogo obrazovaniya. – 2006. – No. 1–2 (8–9). – P. 46–71.
8. Stryuchkov, S.A. Mirnye yadernye vzryvy Taymyra / Stryuchkov S.A. – URL: <https://goarctic.ru/work/mirnye-yadernye-vzryvy-taymyra/> (data obrashcheniya – 22.11.2024 g.)
9. Golubov, B.N. Novye dannye o radiatsionnykh i dlitel'nykh geodinamicheskikh posledstviyakh podzemnogo yadernogo vzryva «Gorizont-4» (kryazh Chekanovskogo, Yakutiya) / Golubov B.N., Ushnitskiy V.E. // –Vestnik NYaTs RK. – 2008. – No. 1. – P. 33–43.
10. Artamonova, S.Yu. Sovremennaya radioekologicheskaya situatsiya na ob"ekte mirnogo podzemnogo yadernogo vzryva «Kraton-3» (1978 g.) v Yakutii / Astrakhanskiy vestnik ekologicheskogo obrazovaniya. – 2016. – No. 3 (37). – P. 14–24.
11. Aktual'nye voprosy radioekologii Kazakhstana [Optimizatsiya issledovaniy territoriy Semipalatinskogo ispytatel'nogo poligona s tsel'yu ikh peredachi v khozyaystvennyy oborot] / pod ruk. S. N. Lukashenko. – Pavlodar: Dom pechati, 2015. – Issue 5. – P. 90–93 – ISBN 978-601-7112-99-8.

12. Lukashenko S.N. Radioekologicheskoe sostoyanie «Yugo-Vostochnoy» chasti territorii SIP / Lukashenko S.N., Stril'chuk Yu.G., Yakovenko Yu.Yu. i dr. // Aktual'nye voprosy radioekologii Kazakhstana [Sbornik trudov Natsional'nogo yadernogo tsentra Respubliki Kazakhstan za 2014–2016 g.] / pod red. E.G. Batyrbekova, S.N. Lukashenko – Pavlodar: Dom pechati, 2017. – T. 1. – Issue 6. – P. 11–90. – ISBN 978-601-7844-53-0.
13. Razrabotka osnov i vybor tekhnologiy likvidatsii poverkhnostnogo zagryazneniya i sposobov ograniчениya vtorichnogo zagryazneniya territorii Semipalatinskogo Ispytatel'nogo Poligona: zaklyuchitel'nyy tekhnicheskii otchet po Proektu MNTTs K-337 / Institut yadernoy fiziki NYaTs RK (IYaF NYaTs RK); S. Khazhekber. – Almaty: IYaF NYaTs RK, 2003.
14. Izuchenie radiologicheskoy situatsii v rayone p. Sarzhal na Semipalatinskom ispytatel'nom poligone: zaklyuchitel'nyy otchet pop proektu NATO Sfp-976046(99) / N. Prist, M. Burkitbaev, O. Artem'ev, S. N. Lukashenko, P. Mitchell. – 2003.
15. Materialy kompleksnogo ekologicheskogo obsledovaniya «yugo-vostochnoy» chasti territorii SIP, rayon ploshchadok «Balapan», «Degelen», «Tel'kem». / Institut radiatsionnoy bezopasnosti i ekologii» RGP NYaTs RK; ruk. S. N. Lukashenko – Kurchatov: IRBE NYaTs RK, 2013. – 341 p.
16. Kabdyrakova A.M. Raspredelenie radionuklidov v granulometricheskikh fraktsiyakh pochvy v mestakh ekskavatsionnykh yadernykh vzryvov na ploshchadkakh «Tel'kem» na Semipalatinskom ispytatel'nom poligone / Kabdyrakova A.M., Kunduzbaeva A.E., Lukashenko S.N. i dr. // Aktual'nye voprosy radioekologii Kazakhstana [Sbornik trudov Natsional'nogo yadernogo tsentra Respubliki Kazakhstan za 2014–2016 g.] / pod red. E.G. Batyrbekova, S.N. Lukashenko – Pavlodar: Dom pechati, 2017. – T. 1. – Issue 6. – P. 306–317.
17. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports Series No. 472, IAEA, Vienna, 2010 – 197 p.
18. GOST 17.1.5.01.-80. Gidrosfera. Obshchie trebovaniya k otboru prob donnykh otlozheniy vodnykh ob'ektov dlya analiza na zagryaznennost'. Moscow, 1984 g.
19. ST RK GOST 51592-2003. Voda. Obshchie trebovaniya k otboru prob / Utverzhden i vveden v deystvie prikazom Komiteta po standartizatsii, metrologii i sertifikatsii Ministerstva industrii i torgovli Respubliki Kazakhstan 07 noyabrya 2003 goda No. 380.
20. Metodika opredeleniya soderzhaniya iskusstvennykh radionuklidov plutoniya-(239+240), strontsiya-90 i tseziya-137 v prirodnykh vodakh metodom kontsentrirvaniya. Almaty, 2001 g.
21. MI 2143-91 No. 5.06.001.98 Aktivnost' radionuklidov v ob'emnykh obraztsakh. Metodika vypolneniya izmereniy na gamma-spektrometre. Rekomendatsiya. Gosudarstvennaya sistema obespecheniya edinstva izmereniy. – Vved. 1998-06-02. – 1991. – 17 p.
22. Metodika opredeleniya izotopov plutoniya-(239+240), strontsiya-90 i ameritsiya-241 v ob'ektakh okruzhayushchey sredy (pochvy, rasteniya, prirodnye vody) / No. 06-7-98 ot 04 marta 1998 g. – Almaty: Almatinskoe GP «TsSMS», 1998.
23. GOST 26449.1-85 Ustanovki distillyatsionnye opresnitel'nye statsionarnye. Metody khimicheskogo analiza solenyykh vod. GOST 26449.1-85. Moscow, 1987.

«ТЕЛ'КЕМ» АЛАҢЫНДАҒЫ СУ ОБЪЕКТІЛЕРІНІҢ РАДИОНУКЛИДТІК ЛАСТАНУЫНЫҢ ҚАЗІРГІ КЕЗДЕГІ ДЕҢГЕЙЛЕРІ

А. К. Айдарханова*, Н. В. Ларионова, А. С. Мамырбаева, Ж. Е. Тлеуканова, Т. Ю. Богатырева, Р. Г. Ермакова

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

* Байланыс үшін E-mail: almira@nnc.kz

Жұмыста Семей сынақ полигонының (ССП) «Телкем» алаңының су объектілерінің «түптік шөгінділер / топырақ - су - өсімдіктер» жүйесіндегі радионуклидтік ластанудың деңгейлері мен таралу сипатын кешенді зерттеу деректері келтіріледі. Экскавациялық жарылыстардың нәтижесінде пайда болып, су толған «Телкем-1» және «Телкем-2» шұңқырлары зерттеу объектілері болды. Аталған зерттеулер шеңберінде техногендік ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ және γ -сәуле шығаратын радионуклидтердің құрамын анықтау жүргізілген түптік шөгінділердің, топырақтың, судың, өсімдіктердің сынамаларына іріктеулер қатар жүргізілді. Нәтижесінде қазіргі уақытта «Телкем» алаңындағы су объектілері экожүйесінің түптік шөгінділері үшін де (^{137}Cs , ^{241}Am , ^{90}Sr және $^{239+240}\text{Pu}$ радионуклидтері үшін), суы үшін де (^{90}Sr үшін) радиоактивті ластанудың жоғары деңгейі сақталып отырғаны анықталды. Алынған деректердің негізінде «түптік шөгінділер – су» жүйесі үшін таралу коэффициенттері (K_T), сондай-ақ «түптік шөгінділер / топырақ - өсімдіктер» жүйесі үшін жинақтау коэффициенттері (K_{Hs-b}) есептелді. ^{90}Sr үшін таралу коэффициенті K_T орта есеппен 10, $^{239+240}\text{Pu}$ үшін K_T – $3,7 \cdot 10^5$ тең. «Телкем» алаңының су экожүйелерінің түптік шөгінділері мен топырағындағы өсімдіктердің техногендік радионуклидтерге қатысты жинақтау қабілеті $K_{Hs-b}^{90}\text{Sr} > K_{Hs-b}^{60}\text{Co} > K_{Hs-b}^{137}\text{Cs} > K_{Hs-b}^{152}\text{Eu} > K_{Hs-b}^{241}\text{Am} > K_{Hs-b}^{239+240}\text{Pu}$ ретімен төмендейді.

Түйін сөздер: «Телкем», радионуклидтік ластану, түптік шөгінділер, су, өсімдіктер, таралу коэффициенті, жинақтау коэффициенті.

CURRENT LEVELS OF RADIONUCLIDE CONTAMINATION IN WATER BODIES
AT THE TELKEM TEST SITE

A. K. Aidarkhanova, N. V. Larionova, A. S. Mamyrbayeva, Zh. E. Tleukanova, T. Yu. Bogatyrova, R. G. Yermakova

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

** E-mail for contacts: almira@nnc.kz*

The paper provides data from the comprehensive studies of the levels and distribution pattern of radionuclide contamination in the 'bottom sediments/soil-to-water-to-plants' of water bodies at the Telkem site of the Semipalatinsk Test Site (STS). Research objects were water-filled craters Telkem-1 and Telekm-2 that resulted from excavation explosions. As part of these studies, sediments, soil, water, plants were dublicately sampled, in which the content of man-made ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and γ -emitting radionuclides were determined. As a result, a high level of radioactive contamination is currently found to persist in the ecosystem of water bodies at the Telkem site both for sediments (^{137}Cs , ^{241}Am , ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$) and water (^{90}Sr). Based upon findings, the distribution coefficient (K_d) for the 'sediments-to-water' system and the concentration ratio (CR_{s-b}) were calculated for the 'sediments/soil-to-plants' system. The distribution coefficient K_d for ^{90}Sr averages 10, for $^{239+240}\text{Pu}$ – $3.7 \cdot 10^5$. Plants' capacity to accumulate from sediments and soil of aquatic ecosystems at the Telkem site, with respect to man-made radionuclides, decreases in the series $CR_{s-b}^{90}\text{Sr} > CR_{s-b}^{60}\text{Co} > CR_{s-b}^{137}\text{Cs} > CR_{s-b}^{152}\text{Eu} > CR_{s-b}^{241}\text{Am} > CR_{s-b}^{239+240}\text{Pu}$.

Keywords: *Telkem, radionuclide contamination, sediments, water, plants, distribution factor, transfer factor.*

СПИСОК АВТОРОВ

- Абуова Ф. У., 54
Абшукирова А. М., 164
Ажаев Г. С., 36, 79
Азамбаев С. Б., 164
Азат С., 174, 181
Азбергенов М. Н., 43
Айдарханов А. О., 113
Айдарханова А. К., 128, 196
Акаев А. С., 5, 191
Акилбеков А. Т., 12
Акылбекова А. Д., 147
Алиярова А. М., 174
Аралбаева Г. М., 12
Арынова Ш. Ж., 79
Аскарулы К., 174
Асылбаев Р. Н., 12, 54, 147
Ахметов К. К., 79
Баделгажы Е. Б., 21
Базарбек А. Б., 147
Бакланова Ю. Ю., 43
Баубекова Г. М., 12, 54
Бекмулдин М. К., 5, 191
Бексейтова К. С., 181
Бияхметова Д. Б., 113
Богатырева Т. Ю., 196
Букина О. С., 43
Бурканова К., 12
Витюк В. А., 88
Витюк Г. А., 88
Вурим А. Д., 88
Даулетбекова А. К., 12
Джусамбаев М. Т., 174
Должиков С. А., 88
Дубровин В. И., 138
Дуйсен А. Ж., 96
Дюсембаева М. Т., 101
Ермакова Р. Г., 128, 196
Жаксыбаева А. А., 96
Жанболатова Г. К., 69
Жантикеев У. Е., 174, 181
Женис Д. Т., 88
Жетписбаев Е. К., 147
Жилкашинова А. М., 69
Жумабеков А. Ж., 147
Загитова А. М., 181
Испулов Н. А., 147
Кабдрахманова С., 69
Кабиев М. Б., 119, 153
Кантай Н., 69
Капсаямов Б. А., 21
Карипбаев Ж. Т., 12
Кашикбаев Е. А., 96
Келсингазина Р. Е., 88
Кенжина И. Е., 119, 153
Кенжина Л. Б., 113
Кисабекова А. А., 54, 147
Козловский А. Л., 119, 153, 164
Коломийцева А. В., 60
Колпакова В. П., 79
Кудайбергенов К. К., 181
Кукса М. А., 43
Кунарбекова М. С., 181
Кыдырмолла А., 69
Кыстаубаева З. К., 21
Ларионова Н. В., 101, 196
Лиу Ж., 174
Мамырбаева А. Н., 108, 113
Мамырбаева А. С., 128, 196
Мережко Д. А., 60
Мережко М. С., 60
Миниязов А. Ж., 69
Минкенова К. С., 101, 108
Мухамедов Н. Е., 88
Мухамедова Н. М., 69
Немытова Л. А., 101
Нургайсинова Н. К., 101
Нурпаисова Г., 191
Онерхан Г. А., 21
Паницкий А. В., 108
Рахимова Б. У., 181
Рябенко О. В., 138
Садуова Б. К., 54
Сеймуханова Л. Н., 181
Скаков М. К., 5, 69, 113
Султахан Ш., 174
Сураев А. С., 88
Сыздыков Е. Т., 21
Тлеуканова Ж. Е., 128, 196
Толенова А. У., 119, 153
Толеубеков К. О., 5, 191
Убаськин А. В., 79
Фазылов Б. Д., 181
Фаурат А. А., 36
Хасенова С., 191
Чектыбаев Б. Ж., 96
Шаймарданов Ж. К., 79
Шакенов К., 174

ТРЕБОВАНИЯ К ОФОРМЛЕНИЮ СТАТЕЙ

Статьи для публикации в журнале отправляются авторами после регистрации на веб-сайте журнала в электронном виде в формате MS WORD (.docx), а после принятия решения о публикации статьи редакцией (по окончании процесса проверки и рецензирования) – и в виде печатной копии окончательной редакции статьи с согласием авторов на публикацию и их подписями (по почте, курьером и пр. в адрес редакции).

Текст печатается на листах формата А4 (210×297 мм) с полями: сверху 30 мм; снизу 30 мм; слева 20 мм; справа 20 мм, на принтере с высоким разрешением (600–2400 dpi). Горизонтальное расположение листов не допускается.

Используйте шрифт Times New Roman высотой 10 пунктов. Пожалуйста, используйте встроенные стили заголовков (Заголовков 1, 2...) только для названия статьи и заголовков подразделов, и не используйте их для обычного текста, таблиц и подрисовочных подписей.

В левом верхнем углу первой страницы должен быть указан индекс УДК. Название статьи печатается ниже заглавными буквами, в одном абзаце. После этого печатается текст краткой аннотации на языке статьи (100–3000 символов), и отдельной строкой (после фразы Ключевые слова:) – ключевые слова (5–10). Далее, со следующего абзаца – основной текст, содержащий разделы: Введение, Основную часть и Результаты (возможно, с подразделами), Заключение. После текста статьи приводится список литературы (на языках оригиналов) и блоки «название статьи, аннотация, ключевые слова» на двух оставшихся языках.

Обратите внимание, что ФИО авторов и представляемые организации в статье указывать не нужно, т.к. статьи проходят двойное «слепое» рецензирование. Эту информацию необходимо будет заполнить на трех языках (русском, казахском, английском) в форме на веб-сайте при подаче статьи. Рекомендуем заранее подготовить ее в виде отдельного документа с таблицами по образцу (см. ОБРАЗЕЦ на следующей странице) и приложить к статье.

Для текста статьи используйте одинарный межстрочный интервал, между абзацами не нужно вставлять пустые абзацы и строки.

Не используйте таблицы для расположения иллюстраций и подрисовочных подписей, а также средства рисования MS Word поверх иллюстраций.

Максимально допустимый объем статьи – 10 страниц.

При написании статей необходимо придерживаться следующих требований:

- Окончательная редакция статьи, прошедшая рецензирование и допущенная к публикации, должна содержать блоки на трех языках – казахском, английском и русском, с указанием названия статьи, фамилий, имен, отчеств авторов, полного названия организаций, городов и стран местонахождения, которые они представляют, аннотации (объемом 100–3000 символов, включая знаки препинания и пробелы), и ключевых слов (5–10).
- Ссылки на литературные источники даются в тексте статьи цифрами в квадратных [...] скобках по мере упоминания. Список литературы приводится по ГОСТ 7.1-2003.
- Пожалуйста, не используйте механизм автоматической нумерации (поля) MS Word для нумерации ссылок на литературу, списков, рисунков и таблиц – используйте обычный текст;
- Иллюстрации (графики, схемы, диаграммы) должны быть выполнены на компьютере (ширина рисунка 8 или 14 см). Особое внимание обратите на надписи на рисунке – они должны быть различимы при уменьшении до указанных выше размеров. Файлы рисунков должны быть представлены отдельно в одном из растровых – .tif, .png (для схем и рисунков с надписями), .jpg (для фото) с разрешением 300 dpi (~1000 px для рисунков шириной 8 см и ~1800 px для рисунков шириной 14 см) или векторных – .svg, .wmf, .emf форматах. Названия файлов должны соответствовать положению в статье (напр. Рисунок 1-a.tif). Для надписей на рисунках предпочтительно использовать шрифт Arial Narrow или аналогичный (узкий шрифт без засечек).
- Математические формулы в тексте должны быть набраны как уравнения MS Word или формулы MathType. Следует нумеровать лишь те формулы, на которые имеются ссылки в тексте.
- Текст должен быть тщательным образом выверен и отредактирован. Бумажная версия статьи должна быть в конце подписана авторами.

К статье прилагаются следующие документы:

- 1) *Сопроводительное письмо от авторов*, в котором должны содержаться сведения о том, что статья может быть опубликована в открытой печати, ранее не была опубликована, не находится на рассмотрении на предмет публикации в других изданиях, статья не содержит информации, способной привести к конфликту интересов.
- 2) *Файлы рисунков*.

Название статьи, аннотация, ключевые слова, а также сведения обо всех авторах статьи заполняются на 3-х языках (русском, казахском, английском) в форме на сайте при подаче статьи (эту информацию также желательно приложить к статье в виде отдельного файла – см. ОБРАЗЕЦ на следующей странице).

Дополнительную актуальную информацию по оформлению, подготовке статей, авторским правам, регистрации можно получить на веб-сайте журнала в разделе **Правила для авторов** (<https://journals.nnc.kz/jour/about/submissions>).

Статьи, оформление которых не соответствует указанным требованиям, к публикации не допускаются.

ОБРАЗЕЦ

Название статьи (на русском языке)

Таблица 1. Авторы (на русском языке)

Порядковый номер автора статьи	Фамилия	Имя полностью	Отчество полностью (если имеется)	Должность	Ученая степень	Телефон (без скобок, пробелов и дефисов)	Электронная почта	Номера организаций, которые представляет автор (из таблицы 2)
1	Иванов	Иван	Иванович	доцент	PhD	+57771114455	my_mail@mail.ru	1, 2
2	Петров	Петр	Петрович	зав. лаб.	к.ф.-м.н.	+69992223366	my_mail@google.com	1

Таблица 2. Организации (на русском языке)

Порядковый номер организации	Наименование	Полный почтовый адрес (индекс, страна, город, улица, дом)	Официальный веб-сайт (если имеется)
1	Евразийский национальный университет им. Л. Н. Гумилева	010008, Республика Казахстан, г. Нур-Султан, ул. Сатпаева, 2	www.enu.kz
2	Астанинский филиал Института ядерной физики МЭ РК	010008, Республика Казахстан, г. Нур-Султан, пр. Абылай хана, 2/1	www.inp.kz

Название статьи (на казахском языке)

Таблица 1. Авторы (на казахском языке)

Мақала авторының реттік нөмірі	Тегі	Толық аты	Әкесінің толық аты (болса)	Лауазымы	Ғылыми дәрежесі	Телефоны (жақшасыз, бос орынсыз және дефиссіз)	Электрондық поштасы	Автор ұйымдарының нөмірлері (2-кестеден)
1	Иванов	Иван	Иванович	доцент	PhD	+57771114455	my_mail@mail.ru	1, 2
2	Петров	Петр	Петрович	зертхана меңгерушісі	ф.-м.ғ.к.	+69992223366	my_mail@google.com	1

Таблица 2. Организации (на казахском языке)

Ұйымның реттік нөмірі	Атауы	Толық пошталық мекенжайы (индекс, ел, қала, көше, үй)	Ресми веб-сайт (болса)
1	Л. Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті	010008, Қазақстан Республикасы, Нұр-Сұлтан қ., Сәтпаев көшесі, 2	www.enu.kz
2	ҚР ЭМ Ядролық физика институтының Астана филиалы	010008, Қазақстан Республикасы, Нұр-Сұлтан қ., Абылай хан даңғылы, 2/1	www.inp.kz

Название статьи (на английском языке)

Таблица 1. Авторы (на английском языке)

Order number of author's article	Surname	Full Name	Full Middle Name (if any)	Position	Academic degree	Telephone (free of brackets, gaps and hyphens)	E-mail	Numbers of organizations representing by author (from Table 2)
1	Ivanov	Ivan	Ivanovich	Associate professor	PhD	+57771114455	my_mail@mail.ru	1, 2
2	Petrov	Peter	Petrovich	Chief of laboratory	Cand. of Phys. and Math. Sc.	+69992223366	my_mail@google.com	1

Таблица 2. Организации (на английском языке)

Order number of organization	Title	Full post address (zip code, country, city, street, house)	Official web-site (if any)
1	L.N. Eurasian National University	010008, Republic of Kazakhstan, Nur-Sultan, Satpaev st. 2	www.enu.kz
2	Astana Branch of the Institute of Nuclear Physics ME RK	010008, Republic of Kazakhstan, Nur-Sultan, ave. Abylai Khan, 2/1	www.inp.kz

Примечание: если информация отсутствует – оставляйте соответствующие ячейки таблицы пустыми.

Ответственный секретарь к.ф.-м.н. В.А. Витюк
тел. +7 (722-51) 3-33-35, E-mail: VITYUK@NNC.KZ

Технический редактор И.Г. Перепелкин
тел. +7 (722-51) 3-33-33, E-mail: IGOR@NNC.KZ

Адрес редакции: 180010, Казахстан, г. Курчатов, ул. Бейбіт атом, 2Б
<https://journals.nnc.kz/jour>

© Редакция журнала «Вестник НЯЦ РК», 2024

Свидетельство о постановке на учет №17039-Ж от 13.04.2018 г.
Выдано Комитетом информации Министерства информации и коммуникаций Республики Казахстан

Тираж 300 экз.

Выпуск набран и отпечатан в типографии
Национального ядерного центра Республики Казахстан
180010, Казахстан, г. Курчатов, ул. Бейбіт атом, 2Б

