

10. Prokuratov I.A., Mikhailov Yu.V., Andreev D.A. Pulse operation mode of inertial electrostatic plasma confinement devices. — Ann. Nucl. Energy, 2024, v. 203, 110520, p. 1—8. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2024.110520>.
11. Крестелев Е.Г., Масленников С.П., Школьников Э.Я. Генератор высоковольтных наносекундных импульсов для возбуждения диффузных газовых разрядов при атмосферном давлении. — Приборы и техника

эксперимента, 2009, № 5, с. 98—101. // Krastel'ev E.G., Maslennikov S.P., Shkolnikov E.Ya. A High-Voltage Nanosecond Pulse Generator for Exciting Diffuse Gas Discharges at Atmospheric Pressure. — Instrum. Exp. Techn., 2009, v. 52, № 5, p. 703—706. DOI: 10.1134/S002044120905011X.

Поступила в Редакцию 30.05.24

УДК 53.07.53.08

## ПЕРСПЕКТИВЫ ГАММА-РЕЗОНАНСНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ НА НЕЙТРОННЫХ ПУЧКАХ

*Лебедев В.Т., Козлов В.С., Ремизов М.В., Кульвелис Ю.В.*

*(НИЦ «Курчатовский ин-т» — ПИЯФ, г. Гатчина)*

e-mail: lebedev\_vt@pnpi.nrcki.ru

Мессбауэровская спектроскопия востребована в задачах химии, геологии, материаловедения, технологиях катализаторов, биологических исследованиях в связи с изучением зарядового состояния (валентности) атомов металлов, их координации с ближайшим окружением и является комплементарным подходом в экспериментах на нейтронных пучках реакторов при анализе структуры и динамики конденсированных сред [1, 2]. Отсюда очевидны преимущества объединения экспериментальных возможностей методов мессбауэровской спектроскопии и радиационного материаловедения для определения радиационной стойкости различных типов конструкционной стали ядерных реакторов и космической техники. Для этих целей мессбауэровский спектрометр размещается на нейтронном канале для одновременного облучения и изучения образцов с анализом образования и эволюции дефектов во времени в целях создания материалов, устойчивых к радиации и агрессивным средам, тепловым нагрузкам [3—5]. Вместе с этим в спектрометре нейтронный пучок применяют для активации источников  $\gamma$ -излучения с малым периодом полураспада, например,  $^{166}\text{Ho}$ , в исследованиях оксидов эрбия  $\text{Er}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ErFeO}_3$  и  $\text{ErMnO}_3$  с определением характеристик ядер  $^{166}\text{Er}$  (изомерного сдвига, ширины линии, констант квадрупольного взаимодействия) [6].

Эффект Мессбауэра известен для 87 изотопов и 46 элементов, но применение изотопов часто ограничено сложностью их производства, радиоактивные ядра для получения изотопов могут иметь короткий период полураспада и не всегда доступны в нужном количестве, что объ-

ясняет массовое использование  $^{57}\text{Co}$  и  $^{119\text{m}}\text{Sn}$  с длительным периодом полураспада [7, 8].

Возможности мессбауэровской спектроскопии можно расширить, комбинируя изотопы с длительным периодом полураспада ( $^{141}\text{Pr}$ ,  $^{127}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{182}\text{W}$ ), короткоживущие источники  $\gamma$ -квантов ( $^{153}\text{Er}$ ,  $^{166}\text{Er}$ ,  $^{175}\text{Lu}$ ,  $^{186}\text{Os}$ ,  $^{191,192}\text{Ir}$ ,  $^{195}\text{Pt}$ ,  $^{197}\text{Au}$ ) с непрерывной или периодической накачкой на нейтронных пучках и источники мгновенного захватного  $\gamma$ -излучения ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{66}\text{Zn}$ ,  $\text{Gd}$ ,  $\text{Eu}$ ,  $\text{Dy}$ ,  $\text{Yb}$ ,  $\text{Hf}$ ,  $\text{W}$ ) [7, 8].

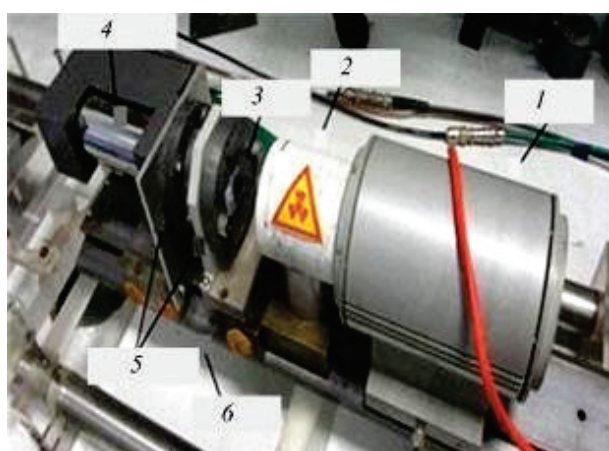
Мессбауэровский спектрометр необходим для изучения биологических систем (быстрое возбуждение ядер  $^{40}\text{K}$ ), катализаторов (непрерывная активация  $^{193}\text{Ir}$ ,  $^{196}\text{Pt}$ ,  $^{197}\text{Au}$ ), высокотемпературных сверхпроводников (останов реактора,  $^{141}\text{Pr}$ , активация  $\text{Dy}$ ), минералов и магнитных структур ( $\text{Gd}$ ,  $\text{Er}$ ,  $\text{Dy}$ ,  $\text{Yb}$ , быстрая и кратковременная активация), радиоактивных отходов ( $^{129}\text{I}$ , останов реактора,  $^{127}\text{I}$ ), корродирующих материалов атомных, тепловых, конденсационных и других электростанций (останов реактора,  $^{57}\text{Co}$ ), а также для обнаружения в облученных нейтронами образцах изотопа  $^{57}\text{Fe}$  при анализе вызванных радиацией химических изменений в твердых телах [8, 9].

Создание спектрометра на нейтронном пучке и в дальнейшем серии таких приборов в нашей стране позволит решать указанные фундаментальные и прикладные задачи. Задачи настоящей работы — разработка физической модели такого типа спектрометра, отработка режимов измерений и проведение экспериментов на модели в целях масштабирования установки для работы на пучках с высокой плот-

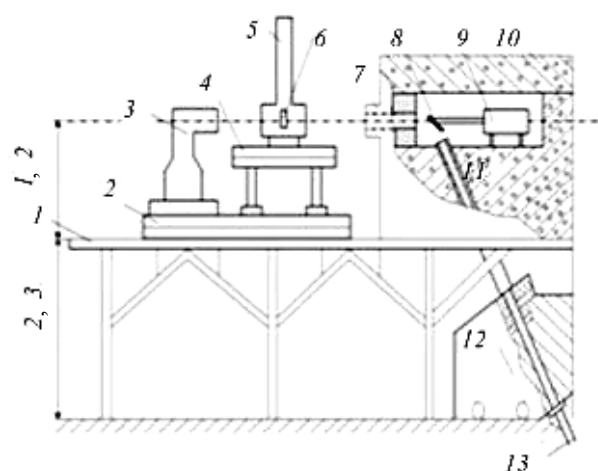
ностью нейтронного потока и заданными спектральными характеристиками.

**Физическая модель спектрометра Мессбауэра на нейтронном канале.** В нашей стране обновляется база фундаментальных и прикладных исследований на пучках тепловых и холодных нейтронов [10]. На реакторе ПИК имеются условия для размещения мессбауэровского спектрометра [10, 11]. В этих целях на первом этапе был создан модельный вариант — прототип полномасштабного спектрометра на наклонном нейтронном канале (рис. 1, 2).

Решаемая задача заключалась в разработке физической модели спектрометра в масштабе



Р и с. 1. Общий вид физической модели мессбауэровского спектрометра: 1 — источник  $\gamma$ -излучения на доплеровском модуляторе; 2 — радиационная защита; 3 — образец; 4 — фотоумножитель; 5 — коллиматоры; 6 — оптическая скамья



Р и с. 2. Принципиальная схема мессбауэровского спектрометра на наклонном нейтронном канале реактора: 1 — общая платформа; 2 — гасящая вибрации платформа; 3 — детектор; 4 — юстировочная площадка; 5 — криостат; 6 — образец; 7 — коллиматор; 8 — источник  $\gamma$ -излучения; 9 — доплеровский модулятор; 10 — биологическая защита; 11 — нейтронвод; 12 — шиббер; 13 — наклонный канал

1:3, исходя из оптимальных габаритов при его размещении на выходе наклонного канала.

Основные характеристики модели следующие:

|                                               |                      |
|-----------------------------------------------|----------------------|
| Число одновременно измеряемых спектров . . .  | 2                    |
| Диапазон скоростей, мм/с . . .                | $\pm 20$             |
| Режим доплеровской модуляции . . .            | Постоянное ускорение |
| Форма вариации доплеровской скорости . . .    | Треугольная          |
| Нелинейность, % . . .                         | 0,05                 |
| Диапазон температуры, К . . .                 | 85—300               |
| Стабилизация температуры с точностью, К . . . | 0,1                  |
| Погрешность измерения температуры, К . . .    | 0,2                  |

Выполнение задачи включало несколько этапов: технические расчеты, проектирование для достижения заданных характеристик модели, конструирование, изготовление, техническая проверка и сборка узлов модели, разработка программного обеспечения для управления установкой, задания режимов измерений в зависимости от характеристик (состава) образцов, условий их вакуумирования, охлаждения от комнатной температуры до температуры жидкого азота, типа и мощности источника  $\gamma$ -излучения ( $^{57}\text{Co}$ ,  $^{151}\text{Sm}_2\text{O}_3$ ), изготовление и комплектование электронных модулей, сборка и тестирование системы управления, набора, сортировки, обработки данных с помощью двух связанных по локальной сети компьютеров с постановкой на центральный компьютер отечественной программы MossFit [1] для обработки спектров в приближении лоренцевской формы линий. Затем следуют пуск и эксплуатация установки в тестовых режимах, измерение фона без источников  $\gamma$ -излучения и при их наличии, проверка линейности счета детектора при вариации интенсивности пучка с помощью аттенуатора, выбор и установка механического пресса для приготовления образцов, конструирование и изготовление механической оснастки. Далее проводится отработка методики пробоподготовки на стадиях растирания исследуемого вещества в ступке под слоем спирта во избежание окисления, высушивания, смешивания с наполнителем (сахарная пудра, порошок полиэтилена), прессования таблетки нужного диаметра для размещения в узле образца, калибровка шкалы скоростей по стандарту  $\alpha$ -Fe. Заключительный этап — измерения на серии контрольных образцов, которыми являлись нанодиазиды с привитыми ионами европия, композиты оксида

графена с феррочастицами, ионообменные мембраны с наполнением ионами  $\text{Fe}^{3+}$ , пиролизаты дифталоцианина европия.

Достигнутые на модели технические характеристики и физические результаты составили базу исходных данных для перехода к созданию полномасштабного спектрометра на наклонном канале реактора ПИК с высокой плотностью нейтронного потока.

В итоге решения указанных задач были достигнуты плановые параметры модели. Узлы спектрометра размещали на виброзащищенной оптической скамье вместе с приспособлениями для их регулировки (юстировки) по оси пучка  $\gamma$ -излучения. Для детектора на основе фотомножителя была создана радиационная защита и установлены коллиматоры, что обеспечило безопасные условия работы и минимальный уровень фона (ниже собственного шума детектора 0,2 имп./с).

На действующей установке (см. рис. 1) были проведены эксперименты на пропускание излучения через образцы в режиме постоянного ускорения источника  $\gamma$ -излучения ( $^{57}\text{Co}$ ,  $^{151}\text{Sm}_2\text{O}_3$ ) при треугольной форме вариации доплеровской скорости с возможностью изучать образцы в погружном криостате при температуре жидкого азота [11]. Калибровку спектрометра, подготовку образцов, измерения и анализ спектров проводили по рассмотренным методикам.

Спектрометр позволяет получать информацию о валентном состоянии, химической связи атомов, магнитной структуре образцов, координации ионов металлов с ближайшим атомным окружением, например,  $3d$  и  $4f$  ионов внутри фуллеренов и нанотрубок, в каналах мембран и др.

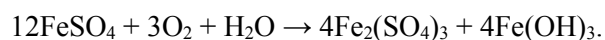
Созданная модель служит для разработки полномасштабного спектрометра, который будет применяться в комбинации с приборами рассеяния нейтронов для анализа структуры и динамики вещества в задачах химии, физики, биологии, материаловедения. Для прибора на наклонном канале реактора возможно расширение доступного спектра ядер от серийно применяемых  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{119\text{m}}\text{Sn}$ ,  $^{151}\text{Sm}_2\text{O}_3$  до нескольких десятков изотопов, включая лантаноиды и актиноиды, активируемые нейтронами [10]. В полномасштабном спектрометре предусмотрено 10-кратное увеличение диапазона скоростей

вибратора относительно указанного, поскольку современные приборы используют диапазон скоростей от  $\pm 1$  до  $\pm 1000$  мм/с при экспериментах в сильных магнитных полях [12].

На реакторе ПИК в наклонном канале внутренним диаметром 82 мм полный поток нейтронов составит  $2 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$  (90% тепловых, 10% быстрых нейтронов) [10]. При номинальной мощности реактора 100 МВт плотность нейтронного потока в 30 раз выше показателя аналога [8]. При номинальной плотности потока для активации источника  $3,6 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$  поток  $\gamma$ -квантов на образце диаметром 60 мм на расстоянии 100 см от активируемого источника, например,  $^{56}\text{Fe}$ , имеющего сечение поглощения 2,25 б для нейтронов с длиной волны  $\sim 0,2$  нм, в телесном угле  $3 \cdot 10^{-3} \text{ ср}$  при условии поглощения нейтронов в мишени (площадь  $50 \text{ см}^2$ ) в  $e$  раз составит  $2,9 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$  [13]. При собственном шуме детектора  $\sim 0,2$  имп./с на работающем реакторе ожидается уровень фона  $\sim 1$  имп./с и отношение сигнал/фон  $\sim 3 \cdot 10^7$ .

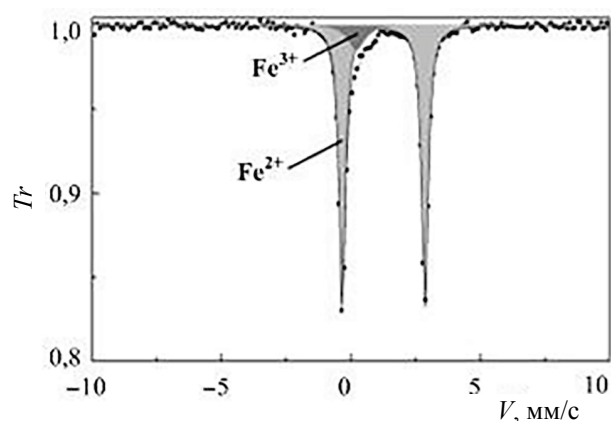
Таким образом, разработанный спектрометр станет быстродействующим многоцелевым инструментом экспресс-тестов исходных, облученных и новых реакторных материалов [14].

**Результаты и обсуждение.** При тестировании спектрометра были получены данные для реактива  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  (ГОСТ 4148—78), который исходно содержал не менее 99,5% ионов  $\text{Fe}^{2+}$  и не более 0,5% ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . Реактив подвергали действию кислорода и атмосферной влаги, железо в нем окислялось с образованием ионов  $\text{Fe}^{3+}$  по реакции



Спектр порошка реактива показал дублет ионов  $\text{Fe}^{2+}$  и слабый синглет ионов  $\text{Fe}^{3+}$  (рис. 3). Из обработки данных определили параметры линий: амплитуду ( $A$ ), ширину (на полувысоте) ( $\Gamma$ ), изомерный сдвиг ( $\delta$ ), квадрупольное расщепление ( $Q$ ), нормализованную площадь под кривой поглощения компонента спектра ( $S$ ) (см. таблицу).

Из параметров была найдена пропорция чисел ионов  $\text{Fe}^{2+}:\text{Fe}^{3+} = 89,2:10,8\%$  в образце (см. таблицу). Тест показал возможности спектрометра для определения зарядового состояния ионов железа в образце посредством неразрушающего анализа протекающих реакций.



Р и с. 3. Данные трансмиссии  $Tr(V)$  порошка соли  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ , включающей двухвалентное железо (интенсивный дублет) и примесь соединений трехвалентного железа (слабый синглет) в зависимости от скорости смещения источника  $\gamma$ -квантов с аппроксимацией компонентов (всего спектра) лоренцианами (суммой)

#### Расчетные параметры мессбауэровского спектра $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$

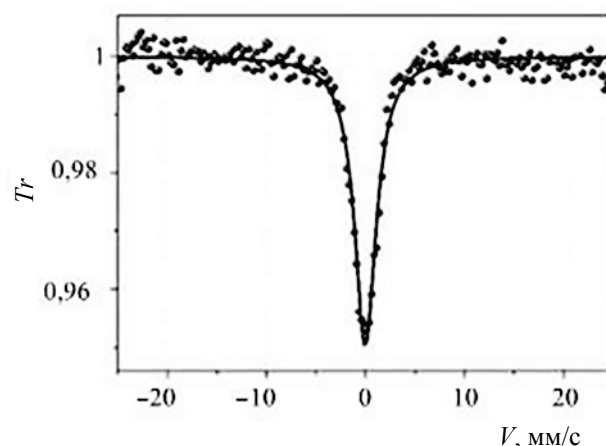
| Параметр          | Синглет           | Дублет            |
|-------------------|-------------------|-------------------|
| $A$ , $10^3$ имп. | $5,86 \pm 0,40$   | $64,58 \pm 0,46$  |
| $\Gamma$ , мм/с   | $0,806 \pm 0,088$ | $0,304 \pm 0,003$ |
| $\delta$ , мм/с   | $0,197 \pm 0,030$ | $1,262 \pm 0,001$ |
| $Q$ , мм/с        | —                 | $3,194 \pm 0,002$ |
| $S$ , %           | $10,8 \pm 1,4$    | $89,2 \pm 1,1$    |

В следующих опытах образцами служили детонационные наноалмазы DNDZ— размером  $\sim 5$  нм с отрицательным потенциалом поверхности и привитыми ионами европия. Определенное зарядовое состояние  $\text{Eu}^{3+}$  позволило объяснить структурирование частиц алмазов в водных золях в результате их связывания через ионы  $\text{Eu}^{3+}$  (рис. 4) [15].

В дальнейших экспериментах изучали композиты оксида графена (GO) с интеркалированными магнитными наночастицами [11]. По данным рентгенографии образцы включали магнетит ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) и парамагнитные частицы размером  $\sim 4$  нм. Измерения на спектрометре позволили дополнительно обнаружить гематит ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), фазы карбида железа и обедненные железом аморфные кластеры углерода, не выявленные в дифракции.

Таким образом, модельный спектрометр успешно прошел испытания в измерениях на образцах разных типов.

Следует отметить, что спектрометры на нейтронных каналах созданы и действуют в зарубежных странах. В нашей стране это направ-



Р и с. 4. Данные трансмиссии  $Tr(V)$  образца карбоксилированных детонационных наноалмазов с отрицательным поверхностным потенциалом и привитыми ионами  $\text{Eu}^{3+}$  в зависимости от скорости смещения источника  $\gamma$ -квантов с аппроксимацией лоренцианом

ление ядерно-физических исследований находится в процессе становления в связи с пуском нейтронных источников высокого потока. Спектрометр с привязкой к наклонному каналу реактора ПИК впервые разрабатывается для его максимального приближения к зоне и значительного снижения  $\gamma$ -фона относительно условий, в которых эксплуатируются аналоги [8, 9] на прямых горизонтальных каналах. По итогам первого этапа найдены технические решения и создан прототип прибора, прошедший испытания и показавший требуемые характеристики, что позволило получить необходимую информацию для реализации проекта полномасштабного спектрометра.

**Закключение.** Созданный спектрометр — прототип прибора на наклонном канале реактора ПИК показал высокие экспериментальные возможности анализа зарядового состояния и ионного окружения атомов  $3d$  и  $4f$  металлов (Fe, Eu) в разных системах и наноразмерных структурах (кристаллогидраты, детонационные алмазы, магнитные композиты на основе оксида графена), что важно для приложений данной методологии в технологиях имеющихся и разрабатываемых функциональных материалов.

Полученные результаты позволят создать полномасштабный прибор для междисциплинарных исследований на наклонном канале реактора с высоким нейтронным потоком для научно-технического, технологического, промышленного применения благодаря непрерывной (периодической) нейтронной активации на

реакторе источников  $\gamma$ -излучения, выбираемых в зависимости от задач. Такой спектрометр значительно расширит экспериментальные возможности ядерно-физических методов при сочетании мессбауэровской и нейтронной спектроскопии, нейтронно-активационного анализа для исследований в областях общего и радиационного материаловедения, ядерной энергетики, экологии и биомедицины.

Работа поддержана Российским научным фондом, грант № 23-23-00129.

Авторы благодарят В.Г. Семенова, Д.И. Богмута, Л.И. Лисовскую, И.Н. Иванову за методическую и техническую помощь.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Семенов В.Г., Москвин Л.Н., Уфимов А.А. Аналитические возможности мессбауэровской спектроскопии. — Успехи химии, 2006, т. 75, № 4, с. 354—365.
2. Mossbauer Spectroscopy. Applications in Chemistry, Biology, and Nanotechnology. Hodoken: Wiley&Sons, 2013. 672 p.
3. Андрианов В.А., Бедельбекова К.А., Озерной А.Н. и др. Мессбауэровские исследования имплантации Fe-57 в металлические Та, Мо и нержавеющую сталь. — Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, 2020, № 4, с. 63—68.
4. Mukashev K.M., Shokanov A.K., Umarov F.F. Mössbauer spectroscopy of radiation-induced processes in metallic systems. — In: New Trends in Alloy Development, Characterization and Application. eBook (PDF) Publ.: InTechOpen. ISBN978-953-51-6386-2. 2015. DOI: 10.5772/59221. Ch. 6, p. 155—191.
5. Kubo K. Neutron in-beam Mössbauer spectroscopy. — Hamon, 2010, v. 20, № 4, p. 270—273.
6. Nakamura S., Yokota H., Kitao S. e.a. Development of  $^{166}\text{Er}$  Mössbauer spectroscopy in KURNS. — Hyperfine Interact., 2019, v. 240, № 75, p. 1—8.
7. Révay Z., Firestone R.B., Belgia T., Molnár G.L. Prompt gamma-ray spectrum catalog. — In: Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams. Boston: Kluwer, 2004. p. 173—366.
8. Belgia T., Lázár K. New in-beam Mössbauer spectroscopy station at the Budapest research reactor. — Hyperfine Interact., 2006, v. 167, p. 875—879.
9. Kubo M.K., Kobayashi Y., Yamada Y. e.a. Industrial applications of Mössbauer effect. — In: AIP Conf. Proc. Berlin, Heidelberg, New York: Springer, 2005, v. 765. 348 p.
10. Kovalchuk M.V., Voronin V.V., Gavrilov S.V. e.a. Research reactor PIK: the first experiments. — Crystallography Rep., 2022, v. 67, № 5, p. 729—738.
11. Камзин А.С., Obaidat I.M., Козлов В.С. и др. Нанокompозиты оксид графена/оксид железа (GrO/FeO<sub>x</sub>) для биомедицины: синтез и исследования. — Физика твердого тела, 2021, т. 63, вып. 6, с. 807—816.
12. Novák P., Procházka V., Stejskal A. Universal drive unit for detector velocity modulation in Mössbauer spectroscopy. — Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. Sec. A: Accelerators, Spectrometers, Detectors Associated Equipment, 2022, v. 1031, p. 166573.
13. Sears V. Neutron scattering lengths and cross sections. — Neutron News, 1992, v. 3, № 3, p. 26—37.
14. Лебедев В.М., Лебедев В.Т., Рунов В.В. и др. Изучение структуры антикоррозийной наплавки для корпусов энергетических реакторов методами дифракции и малоуглового рассеяния нейтронов. — Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, 2016, № 11, с. 46—53.
15. Kulvelis Yu., Lebedev V., Yudina E. e.a. Structural studies of detonation nanodiamonds with grafted metal ions by small-angle neutron scattering. — J. Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, 2020, v. 14, № 1, p. S132—S133.

Поступила в Редакцию 25.07.24

УДК 621.039.58

#### ВЛИЯНИЕ ПРОМЫШЛЕННОЙ ЗАСТРОЙКИ НОВОВОРОНЕЖСКОЙ АЭС-2 НА ОЦЕНКУ ДОЗЫ ВНЕШНЕГО ОБЛУЧЕНИЯ ПЕРСОНАЛА

Красноперов С.Н., Припачкин Д.А. (ИБРАЭ РАН, г. Москва), Тулинов Д.В. (Нововоронежская АЭС, г. Нововоронеж), Данилов А.Д. (Воронежский государственный технический ун-т, г. Воронеж)  
e-mail: dmrwer@mail.ru

На этапе проектирования АЭС при анализе обоснования безопасности необходимо оценивать радиационные последствия разных типов аварий с выходом радиоактивных веществ за пределы защитных барьеров АЭС [1]. Для этого могут использоваться как физически обоснованные методики, так и аттестованные программные средства [2]. Оценка радиационных

последствий аварий на АЭС предполагает определение загрязнения территории и дозы облучения персонала. В некоторых сценариях развития аварий предполагается выброс радиоактивных веществ в атмосферу, что будет приводить к загрязнению территории АЭС. Загрязнение территории будет зависеть от масштаба выброса и развития проектной или запроектной аварии, а