P14-2006-43

Л. Н. Зайцев, С. Л. Зайцев<sup>1</sup>, И. Е. Карпунина, А. Д. Коваленко, А. В. Полюшиц<sup>2</sup>, Л. П. Рогинец<sup>2</sup>, А. И. Станчик<sup>2</sup>, Е. П. Череватенко, В. Ф. Чумаков

# РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ СВЯЗУЮЩЕГО КОМПАУНДА ЭЛЕКТРОИЗОЛЯЦИИ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ МАГНИТОВ УСКОРИТЕЛЕЙ

Направлено на 7-й Международный симпозиум по ионизирующей радиации и полимерам, 23–28 сентября 2006 г., Анталия, Турция

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Институт теоретической и экспериментальной физики, Москва

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Объединенный институт энергетических и ядерных исследований НАН Белоруссии, Минск

P14-2006-43

Зайцев Л. Н. и др.

Радиационная стойкость связующего компаунда электроизоляции сверхпроводящих магнитов ускорителей

Измерены пределы прочности образцов из эпоксидной смолы, содержащей наполнители и антиоксиданты, после облучения  $\gamma$ -квантами мощностью дозы от  $10^{-1}$  до  $10^2$  Гр·с<sup>-1</sup>. Показано, что различные наполнители, особенно специальный цемент, существенно увеличивают радиационную стойкость компаунда.

Впервые методом «температурно-дозовой суперпозиции» и на основе «теории распознавания» определены предельные дозы, соответствующие 25%-му снижению предела прочности (при сохранении электрофизических параметров) и мощности дозы  $10^{-3}$  Гр·с<sup>-1</sup>. Экспериментально получить величину предельной дозы при этих условиях практически невозможно из-за очень длительных сеансов облучения образцов до нужного эффекта.

В работе показано, что результаты ускоренных тестов неправомерно переносить на условия эксплуатации с радиационными нагрузками меньше 10  $\Gamma p \cdot c^{-1}.$ 

Работа выполнена в Лаборатории высоких энергий им. В. И. Векслера и А. М. Балдина ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2006

Zaitsev L. N. et al.

P14-2006-43

The Radiation Stability of a Connecting Compound of the Electric Insulation of Superconducting Accelerator Magnets

The strength limits of the samples of epoxy containing the fillers and antioxidants have been measured after  $\gamma$ -irradiation at dose rate of  $10^{-1}-10^2$  Gy·s<sup>-1</sup>. It is shown that different fillers, especially special cement, essentially increase radiation stability of the compound.

Using «Time-dose-temperature superposition» method and on the base of «Recognition theory» the limiting doses, corresponding to 25% losses of the yield strength (at electrical parameters conservation) were first determined by means of extrapolation to the dose rate of  $10^{-3}$  Gy·s<sup>-1</sup>. It is practically impossible to obtain the value of the limiting dose in experiment for these conditions because it requires a very long time of irradiation of the samples to achieve necessary effect.

It is shown that it is incorrect to transfer the results of accelerated tests to operating conditions when the radiation loads are less than 10 Gy·s<sup>-1</sup>.

The investigation has been performed at the Veksler and Baldin Laboratory of High Energies, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2006

#### введение

В связи с разработкой в мире сильноточных ускорителей релятивистских протонов и ядер исследование радиационной стойкости элементов магнитов продолжает оставаться актуальной проблемой.

Спонтанная рекомбинация вакансий и межузельных атомов, связанная с наличием термически активируемых зон неустойчивости в неорганических средах, так же как и селективный характер химических реакций в органических соединениях предопределяют только экспериментальное изучение радиационной стойкости [1]. Однако это не всегда возможно.

Большая часть магнитных структур ускорителей воспринимает радиационные нагрузки порядка  $10^{-4}$ – $10^{-3}$  Гр·с<sup>-1</sup> [2]. При такой нагрузке требуется «бесконечно» длительное (~ 20 лет, или 5· $10^8$  с) облучение для определения ресурса. В органических материалах радиационные повреждения тем более значительны (при одной и той же дозе), чем меньше мощность дозы. Это является следствием радиационно-окислительных процессов. Поэтому ошибочно результаты ускоренного облучения большой мощностью дозы переносить в область малых мощностей доз (радиационных нагрузок), как это обычно делают при облучениях пучками ускорителей [3].

Кроме того, исследования радиационной стойкости часто требуют замены одного вида ионизирующего излучения другим, источник которого не создает наведенной радиоактивности в облучаемых образцах, более доступен и дешев. В полимерах концентрации макрорадикалов, а следовательно, и радиационные повреждения уменьшаются с ростом ЛПЭ частиц [1]. Например,  $\gamma$ -кванты <sup>60</sup>Со, имеющие ЛПЭ 0,2 кэВ·мкм<sup>-1</sup>, более опасны, чем  $\alpha$ -частицы с ЛПЭ 60 кэВ·мкм<sup>-1</sup> при одинаковых поглощенных дозах. В случае  $\alpha$ -частиц размеры области ионизации увеличиваются и поглощенная энергия распределяется в большем объеме. В результате локальные и средние концентрации активных радикалов ниже у иона с большим зарядом, что уменьшает вероятность их рекомбинации. Практически это означает, что в экспериментах поле смешанного излучения { $p, n, e, \pi, \mu...$ }, инициируемое протонами, вплоть до нескольких ТэВ, и тяжелыми ионами, вплоть до урана, может быть заменено полем  $\gamma$ -квантов <sup>60</sup>Со или тормозным излучением ЛУЭ. Подчеркиваем, что это возможно только в случае органических материалов и полимеров. Поскольку облучения должны быть очень продолжительными, то замена высокоэнергетических пучков ускорителей — электронов, протонов или ионов — на изотопные источники приводит к колоссальной экономии средств.

Основной опасностью для витковой электроизоляции является расслаивание из-за снижения прочности на растяжение связующего компаунда. С точки зрения ресурса обмотки механические свойства при старении полимера имеют такую же важность, как противоусталость для металлов. При снижении предела прочности на 25 % электрофизические параметры электроизоляции заведомо сохраняются, поскольку начинают изменяться при дозе на порядок большей, чем требуется для изменения механических свойств [2].

# 1. ИСТОЧНИКИ ИЗЛУЧЕНИЯ И ДЕТЕКТОРЫ

Облучение образцов выполнялось на источниках, обеспечивающих необходимое различие в радиационных нагрузках, чтобы получить функцию  $D_{\text{lim}} = f(D^{\cdot})$ , где  $D_{\text{lim}}$  — предельная поглощенная доза;  $D^{\cdot}$  — мощность поглощенной дозы (нагрузка). В диапазоне нагрузок от 0,2 до 2 Гр·с<sup>-1</sup> использовались две изотопные (<sup>60</sup>Co) установки: РХМ- $\gamma$ -20 (радиационно-химическая модернизированная гамма-установка, защита которой обеспечивает полную загрузку 20 кКи) и УГУ-420 (универсальная гамма-установка, защита которой обеспечивает полную загрузку 420 кКи).

Более высокая нагрузка на образцы  $(10 \ \Gamma p \cdot c^{-1})$  создавалась тормозным излучением пучка электронов от линейного ускорителя УЭЛВ-10-10 с энергией около 7 МэВ. Ускоритель имел конвейерную систему и работал в обычном режиме облучения различных изделий и материалов, находящихся в поддонах конвейера. Исследуемые образцы располагались вне зоны непосредственного действия пучка электронов и облучались тормозным излучением, образующимся попеременно либо в продукции, проходящей под пучком, либо в массивном алюминиевом мониторе, расположенном ниже, куда пучок проникал через довольно большие зазоры между поддонами. Спектр тормозного излучения является сплошным, со средней энергией 3–4 МэВ и максимальной — около 7 МэВ.

Облучение, которое длилось от нескольких месяцев до одного года, проводилось в ИРФХП (ныне ОИЭЯИ–Сосны НАН Белоруссии, Минск). Всего было проведено пять сеансов облучения в течение трех лет.

Параметры поля  $\gamma$ -излучения <sup>60</sup>Со достаточно стабильны во времени. При распаде изотопа вылетает два  $\gamma$ -кванта (1,333 и 1,172 МэВ). Из многих

видов взаимодействия  $\gamma$ -квантов с веществом при этой энергии для практических целей имеет значение только комптоновское рассеяние и фотоэффект, обуславливающие образование вторичных электронов. Вторичные электроны, обладая достаточной энергией, вызывают многочисленные акты ионизации и возбуждения в облучаемом компаунде, приводя к радиационнохимическим превращениям. Если система «образец–детектор» выбрана правильно, то пространственно-энергетическое распределение  $\gamma$ -квантов не играет существенной роли. Важны только величины D и  $D^{\circ}$ .

Материал детектора практически всегда отличается по радиационным свойствам от материала облучаемого образца. Поэтому дозы в детекторе и образце будут различаться. Однако если размеры детектора малы по сравнению с пробегом вторичных электронов в образце, то его можно представить как полость в образце. Тогда детектор не влияет на равновесное распределение электронов и справедливы соотношения [5]:

$$D_{\text{ger}} = D_{\text{M}}[(m^s)_{\text{ger}}/(m^s)_{\text{M}}]; \quad m^s = -(dE/dx)/\rho,$$
 (1)

где  $m^s$  — массовая тормозная способность, МэВ·см<sup>2</sup>·г<sup>-1</sup>;  $\rho$  — плотность среды, г·см<sup>-3</sup>.

Этот случай реализуется на практике при использовании пленочных дозиметров толщиной  $< 2 \cdot 10^{-1}$ см. В эксперименте цветовые пленочные дозиметры ЦДП-4-1 толщиной 75 мкм и ЦДП-Ф-2 — 150 мкм с площадью  $\sim 1$  см<sup>2</sup> помещали между образцами соответствующих компаундов.

Основой в дозиметрах типа ЦДП является полихлорстирол со специальными добавками металита (зарубежный аналог — FWT-70). При облучении детекторы приобретают различную радужную окраску от светло-желтого до темно-фиолетового в зависимости от величины поглощенной дозы. Этот детектор был выбран из многих других пленочных дозиметров из-за нечувствительности его показаний к кислороду и, соответственно, к  $D^{-}$  (см. рис. 1) и независимости от энергии излучения [5]. Для этой цели дозиметры облучались в различных полях излучения при ЛПЭ от 0,02 до 60 кэВ·мкм<sup>-1</sup> (см. табл. 5.4 в [2]). Дозиметры чувствительны к УФ-излучению и имеют постэффект после облучения, который легко учитывается. В интервале доз  $10^3 - 10^5$  Гр рекомендуется определять дозу при длине волны 430 нм. При градуировке анализ пленок проводили через 3–5 сут после облучения.

При градуировке дозиметров для обеспечения электронного равновесия их помещали в «фантомы», близкие по составу к эпоксидной смоле или полимерцементу. Оптическая плотность (A), соответствующая  $D_{\text{дет}}$ , определялась с помощью спектрофотометра СФ-26 с цифровым вольтметром, что заметно улучшает точность отсчета (A) и расширяет возможность СФ-26 для сканирования пленок. Известно [7], что относительная погрешность измерения (A) зависит от значения самой A:



Рис. 1. Измеренная зависимость показаний различных дозиметров от мощности поглощенной дозы (экспериментальные точки из [7] не показаны): *1* — FWT-70; *2* триацетатцеллюлоза; *3* — голубой целлофан; *4* — цианидный комплекс ПВХ; *5* — ПММА; *6* — ПВХ; точки • — наши данные для ЦДП (пунктир — см. текст)

$$(dA/A) = [0,434(1+10^{2A})^{1/2}/A] \cdot (dI/I_0),$$
(2)

где *I*<sub>0</sub> — интенсивность падающего света.

Функция (2) имеет пологий минимум. При значениях A = 0,3-0,8 погрешность минимальная и изменяется незначительно. При A < 0,3 или A > 0,8погрешность резко возрастает. Неправильный выбор геометрической щели спектрофотометра также приводит к увеличению погрешности, иногда до 20%. Это особенно относится к измерению  $A \rightarrow D_{\text{дет}}$  с помощью пленочных дозиметров типа ЦДП, не имеющих широких полос поглощения. В связи с этим необходимо проводить градуировку и измерения при одной и той же чувствительности спектрофотометра. Нам удалось добиться погрешности градуировки 1,5–3%.

# 2. ОБРАЗЦЫ И МЕХАНИЧЕСКИЕ ИСПЫТАНИЯ

Для исследований взят состав, являющийся полной аналогией связующего компаунда электроизоляции магнитов нуклотрона, поскольку радиационная стойкость компаунда не изучалась. Этот состав условно назвали «эпоксидная

смола ЭД-22М». Индекс «М» означает модернизированная, т.е. вместо широко применяемого пластификатора тиокола использовался полиметил сили-

СН<sub>3</sub> | коновый каучук [ Si — O ], улучшающий технологические и, как предпола-

$$CH_3$$

гали, радиационные свойства. Рецептура для образцов №№ 1-4 была следующая:

 — форполимер на основе смолы дианового типа марки ЭД-22 и каучука ПМСК-5 в соотношении 100:10;

 — отвердитель низкомолекулярный олигамид марки «Версамид» в количестве 60 вес. частей по отношению к форполимеру.

Смесь перед заполнением формочек размером 40 × 15 × 4 мм выдерживалась в термошкафу при 50 °C в течение 30 мин, что способствовало удалению воздуха, захваченного массой в момент перемешивания, и облегчало равномерное заполнение формочки. Время отверждения образцов — 2 ч при 70 °C. После извлечения из формы производили отжиг для снятия напряжений в течение 1 ч при 100 °C. Затем образцы обтачивались до размеров, требуемых по ГОСТу для механических испытаний предела прочности на разрыв. Большая часть образцов помещалась в вакуумную упаковку из лавсана. Предположительно, вакуум составлял ~10<sup>-3</sup> Па.

В работе [4] показано, что радиационный ресурс эпоксидной смолы может быть увеличен путем введения различных наполнителей. В состав для образцов №№ 5, 7 и 8 входил высокодисперсный наполнитель  $Al_2O_3$  в количестве 40 вес. частей к весу состава. Наполнитель вводился в форполимер до соединения с отвердителем.

С целью уменьшения радиационно-окислительных процессов в состав образцов № 9 и 10 был введен антиоксидант. Наиболее эффективным из известных в настоящее время антиоксидантов является орто-ди-трет-бутилфенол, условно обозначаемый СО-3. При технологии изготовления образцов антиоксидант составляет 2–3 вес. части в растворе каучука ПМСК-5. СО-3 с каучуком смешивались при комнатной температуре и вводились в смесь последней. Заполнение форм производилось компаундом, подогретым до 40 °C. Отверждение образцов проводилось в два этапа: выдержка при 20 °C — 24 ч; термообработка при 70 °C — 3 ч.

Все образцы формировались в пакеты по 3 шт. для облучения и последующего механического испытания. Для каждого пакета было 1–2 контрольных образца. В каждом пакете помимо образцов ЭД-22М находились цветовые пленочные дозиметры (о которых сказано выше).

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

На рис. 2 показано относительное изменение предела прочности на разрыв в зависимости от величины поглощенной дозы. Как и в [4], зависимости



Рис. 2. Предел прочности на разрыв компаундов эпоксидной смолы в зависимости от поглощенной дозы: - - - облучение на воздухе при 0,2  $\Gamma p \cdot c^{-1}$ ;  $\bullet$  (1) — ЭД-22М;  $\blacktriangle$  (7) — ЭД-22М с наполнителем Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;  $\triangle$  (9) — ЭД-22М с антиоксидантом; — облучение в вакууме:  $\bullet$  (2, 3 и 4) — ЭД-22М при 0,19, 1,77 и 10  $\Gamma p \cdot c^{-1}$ 

 $\sigma(D)$  — линейные при облучении образцов на воздухе. Однако при облучении в вакууме линейность нарушается. В этом нет никаких физических причин. Просто вакуумная оболочка не выдержала большой дозы и разрушилась. Однако по оценкам ~70 % времени образцы, все-таки, находились в условиях вакуума и, следовательно, не подвергались радиационному окислению.

На рис. 3 приведены результаты настоящей работы для ЭД-22М с наполнителями, а также для сравнения данные из [4] для полимерцемента. Мы дополнительно проанализировали ошибки и отложили их на двух точках с целью интерпретации результатов (см. ниже). В целом, погрешность  $D_{\rm lim}$  укладывается в  $\pm 20$ %.



Рис. 3. Зависимость предельной дозы, соответствующей 25 %-му снижению предела прочности компаундов от мощности поглоглощенной дозы (точки для ЭД-22М соответствуют рис. 2; о → ⊙ — экстраполяция методом ТДС; данные по полимерцементу взяты из [4])

В табл. 1-4 представлены результаты измерений для всех облученных компаундов на воздухе и в вакууме с указанием конкретных величин по-грешности.

Номер	Условия	Доза,	σ. MΠο	$\sigma$ , МПа
образца	облучения ( $D^{\cdot}$ , $\Gamma p \cdot c^{-1}$ )	$\Gamma p (\times 10^6)$	$o_0$ , willa	
1 a	Воздух	$0{,}25\pm0{,}03$		$56,3 \pm 3,9$
1 б	_ " _	$0{,}46\pm0{,}06$	$62,5 \pm 4,0$	$47,5\pm2,8$
1 в	- " -	$0{,}86\pm0{,}09$		$37,0\pm1,9$
Пакет	$D^{\cdot} = 0,2$	$0{,}58\pm0{,}08$	при $\sigma=0,75~\sigma_0$	$46,2\pm3,3$

Таблица 1. Эпоксидная смола марки ЭД-22М

Номер	Условия облучения	Доза,	σ. MΠ <sub>2</sub>	σ MΠ₀	
образца	$(D^{\cdot}, \Gamma \mathbf{p} \cdot \mathbf{c}^{-1})$	Γp (× 10 <sup>7</sup> )	$o_0$ , willa	0, willa	
2 a	Вакуум	$0,\!15\pm0,\!03$		$62,3 \pm 6,3$	
2 б	- " -	$0{,}29\pm0{,}06$	$63{,}6\pm 6{,}5$	$61,1\pm6,0$	
2 в	- " -	$0{,}43\pm0{,}09$		$45,8\pm5,2$	
Пакет	$D^{\cdot} = 0,19$	$0{,}40\pm0{,}09$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$47,7 \pm 4,6$	
3 a	Вакуум	$0{,}26\pm0{,}05$		$63,9\pm6,5$	
3б	- " -	$0{,}49\pm0{,}10$	$65,3\pm6,6$	$60,1 \pm 5,8$	
3 в	- " -	$0{,}80\pm0{,}18$		$44,4 \pm 4,6$	
Пакет	$D^{\cdot} = 1,77$	$0{,}71\pm0{,}17$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$48,9\pm4,7$	
4	Вакуум	$1,\!18\pm0,\!31$	$62,8 \pm 6,1$	$42,2 \pm 7.3$	
-	$D^{-} = 10,0$	$0,\!97\pm0,\!20$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$47,1 \pm 7,5$	

Таблица 2. Эпоксидная смола марки ЭД-22М

Таблица 3. Эпоксидная смола ЭД-22М с наполнителем  $Al_2O_3$ 

Номер	Условия облучения	Доза,	σο ΜΠα	σ ΜΠα	
образца	$(D^{\cdot} =, \Gamma \mathbf{p} \cdot \mathbf{c}^{-1})$	$\Gamma p (\times 10^6)$	00, <b>WIII</b> a	0, 1 <b>1</b> 11a	
5	Воздух	$1,34 \pm 4,0$	$48,2 \pm 9,0$	$32,8 \pm 8,0$	
Пакет	$D^{\cdot} = 11,0$	$1,06 \pm 2,5$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$36,2 \pm 9,2$	
7 a	Воздух	$0{,}39\pm0{,}05$		-	
7б	- " -	$0,\!84\pm0,\!11$	$47,0 \pm 7,0$	$37,5 \pm 3,6$	
7 в	- " -	$1{,}23\pm0{,}22$		$31,0\pm2,7$	
Пакет	$D^{\cdot} = 0,2$	$1,\!04\pm0,\!20$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$35,3 \pm 3,0$	
8 a	Воздух	$0,\!25\pm0,\!03$		$43,2 \pm 4,5$	
8 б	- " -	$0{,}52\pm0{,}06$	$47,0 \pm 7,0$	$34,8 \pm 3,6$	
86	- " -	$0,\!98\pm0,\!12$		$22,2 \pm 2,6$	
Пакет	$D^{\cdot} = 2,0$	$4,\!32\pm0,\!50$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$35,3 \pm 3,0$	

Таблица 4. Эпоксидная смола ЭД-22М с антиоксидантом

Номер	Условия облучения	Доза,	σ. MΠο	σ MΠο	
образца	$(D^{\cdot}, \Gamma \mathbf{p} \cdot \mathbf{c}^{-1})$	Γp (× 10 <sup>7</sup> )	$o_0$ , Milla	<i>o</i> , wirra	
9 a	Воздух	$0,\!17\pm0,\!06$		$54,2 \pm 4,6$	
9б	- " -	$0{,}25\pm0{,}08$	$56,5 \pm 8,3$	$46,8\pm3,9$	
9 в	- " -	$0{,}44\pm0{,}09$		$37,8\pm3,2$	
Пакет	$D^{\cdot} = 0,2$	$0{,}39\pm0{,}10$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$42,\!4\pm8,\!2$	
10 a	Воздух	$0{,}42\pm0{,}10$		$43,3 \pm 5,0$	
10 б	- " -	$0,\!68 \pm 0,\!10$	$52,6 \pm 7,2$	$40,5 \pm 4,2$	
10 в	- " -	$0,81 \pm 0,13$		$37,8 \pm 3,5$	
Пакет	$D^{\cdot} = 1,6$	$0,\!72\pm0,\!22$	при $\sigma = 0,75 \sigma_0$	$39,5 \pm 4,0$	

## 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

При облучении в вакууме или инертной атмосфере радиационная стойкость органических полимеров зависит только от поглощенной дозы и не зависит от мощности дозы. Из этого правила есть исключение, когда одновременно с излучением на материал воздействует световой поток [6, 9].

Характер зависимости эффекта  $\Delta A/\delta \rightarrow D$  (рис. 1) и предельной дозы  $D_{\rm lim}$  (рис. 3) от мощности дозы  $D^{\cdot}$  практически одинаковый. На рис. 1 более отчетливо прослеживается (в соответствии с теорией [1]) относительное постоянство эффекта при увеличении  $D^{\cdot}$  от  $10^{-4}$  до  $10^{-3}$  Гр·с<sup>-1</sup>, которое можно отнести за счет времени старения, когда изменение оптических свойств не зависит от мощности дозы. В интервале от  $10^{-3}$  до  $10^2$  Гр·с<sup>-1</sup> как «эффект», так и D возрастают пропорционально величине  $D^{\cdot}$ . Характерное для этого интервала равновесие между скоростью образования радикалов  $R^{\cdot}$  и R·O<sub>2</sub> и скоростью их гибели все больше нарушается, и при дальнейшем увеличении  $D^{\cdot}$  выше примерно  $10^2$  Гр·с<sup>-1</sup> изменению свойств материала соответствует одна и та же предельно допустимая доза. На этом участке (как и в вакууме) радиационные изменения уже не зависят от процессов окисления и определяются реакциями, сопровождающими деструкцию (или сшивание) полимерных молекул.

Введение  $Al_2O_3$  дает основание предполагать, что амфотерные свойства Al под воздействием облучения могут положительно влиять на радиационнохимические процессы в полимере. Алюминий может выступать донором водорода, нейтрализовать избыток энергии на поверхности контакта со смолой и предотвратить образование некоторого количества радикалов в зависимости от процентного содержания наполнителя. Эффект антиоксиданта CO-3 оказался выше ожидаемого, потому что в ЭД-22М уже присутствует антиоксидант — силиконовый каучук. Введение в него дополнительного антиоксиданта фенольного типа, по-видимому, создает синергетический эффект, и радиационная стойкость образцов несколько возрастает.

В табл. 5 сведены все результаты настоящей работы и данные из [4]. В ней выделены данные, где  $D_{\rm lim}$  не может быть получена непосредственно из экспериментов, но является наиболее важной, поскольку подавляющее число магнитов ускорителей воспринимают именно такие радиационные нагрузки. В работе [4] использовали метод «температурно-дозовой суперпозиции» (ТДС), но при очень больших  $D_{\rm lim} \sim 10^7 - 10^8$  Гр его достоверность не велика.

Рентгенофазный анализ и электронно-графические исследования показали, что полимерцемент — это компаунд, включающий органическую и минеральную фазы [10]. Радиолиз этой системы, по-видимому, не подчиняется закону Аррениуса: нет линейной логарифмической зависимости lg  $\tau$  от 1/T, где T и  $\tau$  - температура и длительность облучения в условиях эксплуатации. Непосредственное вычисление энергии активации E при 363 K с целью ими-

Kontantan	Мощность поглощенной дозы (нагрузка), Гр·с <sup>-1</sup>				
компаунд	$\leq 10^{-3}$	$10^{-2}$	$10^{-1}$	$10^{0}$	10 <sup>1</sup>
ЭД-22М	10 <sup>5</sup>	$2\cdot 10^5$	$4.10^{5}$	$1,2.10^{6}$	$8 \cdot 10^{6}$
ЭД-22М + наполнитель Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3·10 <sup>5</sup>	6·10 <sup>5</sup>	$1,2.10^{6}$	$3,6.10^{6}$	$9.10^{6}$
ЭД-22М + антиоксидант	6·10 <sup>5</sup>	$1,2.10^{6}$	$2,4.10^{6}$	$7,2.10^{6}$	$1.10^{7}$
ЭД-22М + цемент [4]	$4.10^{6}$	8·10 <sup>6</sup>	<b>1,6</b> ·10 <sup>7</sup>	6·10 <sup>7</sup>	$1,5.10^{8}$

Таблица 5. Предельно-допустимые дозы для исследованных компаундов, Гр\*

\*Соответствующие 25 %-му снижению прочности.

тации 20-летней эксплуатации ничего не дало [4]. В случае конкурирующих процессов первого порядка с использованием [11] решали\* уравнение

$$\sigma(\tau, T, D) = \gamma_1 \cdot \exp(-K_1 \cdot \tau) - \gamma_2 \cdot \exp(-K_2 \cdot \tau), \tag{3}$$

где  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$  — коэффициенты, являющиеся функциями концентрации *i*-х связей (химических, физических);  $K_1$  и  $K_2$  — константы скорости химических реакций процесса радиолиза. Прогноз, сделанный при ускоренных испытаниях, когда  $K_1 > K_2$  приводит к предсказанию увеличения предела прочности  $\sigma$  за 20 лет в эксплуатационных условиях. Однако вследствие различия энергии активации при старении возможно изменение скоростей  $K_1 < K_2$ . Расчет прогнозируемой кривой  $\sigma$  ( $\tau$ ) по исходному уравнению (3) указывает на уменьшение величины  $\sigma$ , но количественно ее определить не представляется возможным. Полученная нами зависимость  $D_{\text{lim}}$  от  $D^{-}$  для ЭД-22М без наполнителей (рис. 3) очень хорошо согласуется с данными работы [8] и с приведенной зависимостью для ЭД-20 в [2]. Будем считать, что это наш прототип.

Далее воспользуемся приемами «теории распознавания». К сожалению, после попытки расчетов по [11] ничего другого в нашем распоряжении не имеется. «Теория распознавания» — наука, в которой отсутствует парадигма доказательства, т.е. нужно не доказать, что это так путем строгих вычислений или эксперимента, а узнать, похожи ли радиационно-химические реакции или внутреннее строение образа на некий прототип. Не видно причин, почему функции на рис. 3, по крайней мере, в интервале  $10^{-3}$ – $10^{-1}$  должны иметь разный вид в относительных единицах по сравнению с прототипом. В этом интервале и на рис. 1 все пунктирные линии — параллельные. Прямая линия на рис. 3 для полимерцемента якобы отличается от прототипа, но в пределах уточненных погрешностей пунктирная линия вполне соответствует нашим

<sup>\*</sup>Г. Аковали — частное сообщение на 1-м Конгрессе по ядерной химии [6]

интуитивным представлениям. В последнее время выяснилось, что в математических моделях распознавания можно установить грань между логическим (экспериментом) и интуитивным, но это предмет отдельных специальных исследований.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты, полученные в настоящей работе, а также в [4, 6, 10], в корне меняют наше представление о радиационной стойкости органических полимеров с физико-химической, методологической и даже с экономической точек зрения. Эти результаты уникальные и получены впервые в мире.

С практической точки зрения табл. 5 может служить хорошим ориентиром при выборе связующего компаунда для различных обмоток магнитов, проектируемых или модернизируемых (с целью повышения интенсивности пучка) ускорителей протонов и тяжелых ионов.

При этом следует учитывать, что антиоксиданты при гелиевых температурах начинают расходоваться не только за счет химических превращений под воздействием радиации, а также за счет диффузии в вакуум. Компаунды с антиоксидантами, по-видимому, не могут обеспечивать длительный ресурс сверхпроводящих обмоток. Что касается вакуума, то он безусловно снижает радиационно-окислительные процессы в компаунде, однако требуются дополнительные исследования в надежной вакуумной камере, как это было сделано в [6].

Пока не до конца понятно, за счет чего увеличивается радиационная стойкость эпоксидной смолы при введении в нее «пассивного наполнителя» (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). С активным наполнителем (цементом) все ясно [4, 10], и полимерцементные компаунды с успехом могут применяться в радиационно-стойких магнитах при больших дозах — до  $5 \cdot 10^8$  Гр.

Авторы выражают глубокую благодарность профессору Гюнэри Аковали (СВТУ, Турция), профессору В.Н.Соловьеву (МГСУ, Москва), доктору Г.Н. Тимошенко (ОИЯИ, Дубна) за ряд ценных замечаний при обсуждении результатов, а также Л.Б.Голованову за помощь в некоторых измерениях.

### ЛИТЕРАТУРА

- 1. *Милинчук В. К. и др.* Основы радиационной стойкости органических материалов. М.: Энергоатомиздат, 1994.
- 2. Зайцев Л. Н. Радиационные эффекты в структурах ускорителей. М.: Энергоатомиздат, 1987.
- 3. Зайцев Л. Н. // ЭЧАЯ. 1999. Т. 30, вып. 5. С. 1292–1327.

- 4. Зайцев Л. Н. и др. // Письма в ЭЧАЯ. 2003. №2 [117]. С. 39-45.
- 5. Генералова В. В., Гурский М. Н. Дозиметрия в радиационной технологии. М.: Издво стандартов, 1981.
- 6. Zaitsev L. et al. Proceedings 1-st Int. Nucl. Chem. Congress 22–29 May 2005. Kusadasi, Turkey Rep No 181; Письма в ЭЧАЯ (направлено).
- 7. Mavrodineann R., Schultz J. J., Menis O. NBS Special Publication-378. Washington: US Government Printing Office, 1973.
- Дьяков Е. М., Покровский К. К., Соловьев В. Н. Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Проектирование и строительство, М.: Изд-во ЦНИИатоминформ. 1981. Вып. 3(10). С. 20–23.
- 9. Zaitsev L. N. // Physics of Particles and Nuclei, 1999. V. 30, No. 5. P. 560-577.
- 10. Беренюк М.А. и др. Препринт ИФВЭ 86-75, Серпухов, 1986.
- Somersall A. S., Guillet J. E. Computer Modeling of Polymer Photooxidation and Stabilization. No 169, American Chemical Society: Washington D.C., 1985. P. 211– 233.

Получено 31 марта 2006 г.

Редактор М. И. Зарубина

Подписано в печать 22.06.2006. Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная. Усл. печ. л. 0,75. Уч.-изд. л. 0,89. Тираж 295 экз. Заказ № 55380.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований 141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6. E-mail: publish@jinr.ru www.jinr.ru/publish/