

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

621.384.6;538.958

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ УСТАНОВКИ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ
РЕАКЦИЙ ТРАНСФОРМАЦИИ И РЕЛАКСАЦИИ В
КОНДЕНСИРОВАННЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМАХ**

© 2026 г. А. В. Спирина^a, О. Н. Чайковская^{a,b}, В. И. Соломонов^a,
А. И. Липчак^a, Е. Н. Бочарникова^{a,b,*}, Н. П. Безлепкина^{a,b}, Л. Н. Лобанов^a,
С. А. Шунайлов^a, М. И. Яландин^{a,c}, В. Г. Шпак^a, С. А. Чайковский^{a,c}

^a *Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук
Россия, 620016, Екатеринбург, ул. Амундсена, 106*

^b *Национальный исследовательский Томский государственный университет,
Россия, 634050, Томск, просп. Ленина, 36*

^c *Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук*

**E-mail: bocharnikova.2010@mail.ru*

Поступила в редакцию 23.04.2026

После доработки 06.07.2026

Принята к публикации 24.08.2026

Рассматривается влияние параметров импульсных электронных пучков от двух установок, КЛАВИ и РИЛС, на трансформацию сульфатуанидина в твердом и растворенном состояниях. Обе установки генерировали пучки с близкими средними значениями кинетической энергии электронов (170 и 210 кэВ), одинаковыми длительностями импульсов на полувысоте (2 нс), но с разными распределениями плотности электронного тока по времени и электронов по энергиям. В первом случае (КЛАВИ) электронный пучок имеет одномодальное распределение электронов по энергиям, во втором случае (РИЛС) – двухмодальное. Обнаружено влияние этого фактора на трансформацию сульфатуанидина в обоих состояниях при облучении электронным пучком вплоть до 3200 импульсов с частотой 1 Гц. По спектрам импульсной катодолуминесценции показано, что твердый сульфатуанидин трансформируется в два раза быстрее на установке РИЛС (768 Гр за один импульс), чем при использовании КЛАВИ (1.54 кГр за один импульс), несмотря на меньшую поглощенную дозу. Воздействие электронным пучком на растворы при использовании установки РИЛС приводит к хаотичному поведению интенсивностей флуоресценции, в то время как на КЛАВИ флуоресценция спадает монотонно с увеличением дозовой нагрузки.

Ключевые слова: электрофизические установки, радиоллиз, трансформация, сульфатуанидин, моногидрат, ангидрат, импульсная катодолуминесценция, поглощение, флуоресценция.

1. ВВЕДЕНИЕ

Мощные импульсные потоки электронов активно внедряются в различные виды человеческой деятельности, демонстрируя исключительную эффективность и

многофункциональность. Например, электронные пучки используются в лучевой терапии онкологических заболеваний, их применяют для точечного воздействия на опухоли с минимальным повреждением окружающих здоровых тканей [1–3]. С помощью электронных ускорителей проводится стерилизация медицинских инструментов и лекарственных препаратов [4–6], обрабатываются пищевые продукты [7, 8]. Радиационное воздействие пучками электронов используется для обработки поверхности металлических изделий, модификации структуры материала, очистки поверхностей и улучшения антикоррозионных свойств деталей [9, 10]. В научных исследованиях электронные пучки используются в электронной микроскопии для обеспечения получения изображений объектов с высоким разрешением и детализацией. Они являются источником рентгеновского излучения, применяемого в дифракционных исследованиях кристаллических структур веществ. Также потоки электронов способны возбуждать люминесценцию в конденсированных средах с последующей возможностью проведения разностороннего люминесцентного анализа. Это далеко не все области использования данного физического воздействия. И по сей день эта технология привлекает внимание ученых и инженеров по всему миру.

Для генерации электронных пучков используются разные установки, где указываются основные параметры, такие как средняя кинетическая энергия электронов (ускоряющее напряжение), сечение и ток электронного пучка, а для импульсных устройств дополнительно указывается длительность импульса. Эти параметры важны для оптимизации характеристик электронных пучков для обеспечения высокой эффективности и точности работы приборов в различных применениях. Тем не менее такой важный параметр, как распределение электронов пучка по энергиям и плотности тока по времени, может иметь заметное влияние на глубину проникновения электронов и процесс релаксации энергии в среде при обработке материалов, в частности органических. Именно этот эффект привлекает интерес.

В настоящей работе рассматриваются две электрофизические установки, КЛАВИ и РИЛС, созданные на базе малогабаритных генераторов высоковольтных импульсов серии РАДАН [11–13], с близкими средними значениями энергий электронов и длительностями импульсов. Цель заключается в том, чтобы показать на основе спектрально-люминесцентных методов влияние на трансформацию сульфатуанидина в твердом и растворенном состояниях распределения электронов по энергиям и тока по времени.

2. ОБЪЕКТЫ, АППАРАТУРА И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

В качестве объекта исследования был взят сульфатуанидин (sulfaguanidine, $C_7H_{10}N_4O_2S$, SGD) производства фирмы SIGMA-ALDRICH (г. Сент-Луис, США), No. 1003130909 S8751-25G. Он является синтетическим противомикробным средством из группы сульфаниламидов,

структурно представляющим собой производное сульфаниламида (рис. 1), и характеризуется наличием бензольного кольца, аминогруппы в пара-положении и гуанидиновой группы, присоединенной к сульфонамидному азоту.

Рис. 1. Структурная формула сульфатуанидина

Сульфатуанидин в твердом состоянии изучался в виде спрессованных таблеток диаметром 14 мм и толщиной 1.5 мм. Трансформация твердого SGD фиксировалась в режиме реального времени: одновременно проводилось воздействие электронным пучком на таблетку и регистрировались ее спектры импульсной катодолюминесценции (ИКЛ).

Дифрактограммы порошка SGD до и после облучения были получены на дифрактометре D8 Discover на медном излучении ($\text{Cu } K_{\alpha 1,2} = 1.542 \text{ \AA}$) с графитовым монохроматором на дифрагированном луче. Обработка выполнена с использованием программы TOPAS 3.

С помощью инфракрасного микроскопа MultuScope, совмещенного со спектрометром SpectrumOne фирмы PerkinElmer, были зарегистрированы инфракрасные спектры диффузного отражения таблеток SGD до и после облучения электронным пучком. Спектр с разрешением не хуже 4 см^{-1} представляет собой усреднение по 20 интерферограммам.

Водный раствор SGD не проявлял ИКЛ, поэтому его трансформация отслеживалась путем измерения спектров поглощения и флуоресценции непосредственно до и после облучения. Сульфатуанидин, растворенный в дистиллированной воде ($C = 10^{-3}$ моль/л) объемом 1 мл облучался в алюминиевой кювете в воздухе при комнатной температуре. После облучения раствор разбавлялся дистиллированной водой до 10 мл для дальнейшего исследования трансформации растворенного вещества с помощью абсорбционной и флуоресцентной спектроскопии.

Спектры поглощения раствора SGD до и после воздействия электронного пучка регистрировались на двухлучевом спектрофотометре SPECORD 200 (Analytik Jena, Германия) в области 200–800 нм при комнатной температуре образца в кварцевой кювете с длиной оптического пути 1 см. Спектры флуоресценции и возбуждения флуоресценции были получены с помощью спектрофлуориметра VARIAN CaryEclipse (Agilent Tech Co., США–Нидерланды–Австралия).

Воздействие электронным пучком на SGD, а также регистрация спектров ИКЛ твердого SGD проводились с помощью установок КЛАВИ и РИЛС, созданных на базе генераторов высоковольтных импульсов РАДАН-300 и РАДАН-220 соответственно. Установка КЛАВИ в основном применялась для исследования ИКЛ твердых неорганических материалов. Ее малогабаритная модификация описана в работе [14], однако было показано [15, 16], что воздействие электронного пучка, генерируемого РАДАН-300, на конденсированные

органические вещества приводит к их трансформации. Для более глубокого изучения процессов трансформации органического вещества была создана специальная установка РИЛС (проект РНФ №24-19-20031) на базе РАДАН-220. Обе установки содержат три автономных блока: блок радиолиза и возбуждения ИКЛ (электронный ускоритель), блок регистрации ИКЛ (фотоприемник) и блок управления (компьютер). Эти блоки являются независимыми и могут использоваться в составе других установок.

На рис. 2 приведены схемы электронных ускорителей обеих установок. В них в качестве нагрузки генераторов РАДАН-220 и РАДАН-300 используется серийно выпускаемая вакуумная электронная трубка ИМАЗ-150Э. Оба генератора представляют собой высоковольтную коаксиальную формирующую линию, совмещенную с трансформатором Тесла с разомкнутым сердечником и заряжаемую путем разряда первичного емкостного накопителя на первичную обмотку трансформатора. Главное конструктивное различие обоих генераторов – топология формирующей линии. РАДАН-300 имеет двойную формирующую линию (рис. 2а), коммутируемую неуправляемым разрядником высокого давления (азот) с регулируемым промежутком, величину которого можно изменять. Это позволяет варьировать амплитуду выходного импульса напряжения и, соответственно, энергию и плотность тока электронного пучка. В работе все эксперименты проводились при одном и том же зазоре разрядника и давлении 38 атм. В РАДАН-220 (рис. 2б) формирующая линия является одиночной и коммутируется на нагрузку серийным отпаянным разрядником Р49. Более подробно конструкция и параметры генераторов описаны в обзоре [13].

Рис. 2. Схематическое изображение ускорителей установок КЛАВИ (а) и РИЛС (б) и нормированные осциллограммы тока их электронных пучков...

Ток пучков электронов измерялся с помощью вакуумированного коллекторного датчика тока с апертурой диаметром 4 мм, закрытой алюминиевой фольгой толщиной 10 мкм (рис. 2). К осциллографу Tektronix DPO 70404 С с полосой пропускания 4 ГГц датчик тока подключался через согласованные (50 Ом) аттенюаторы с различными коэффициентами деления ($K_d = 10, 100, 200, 1000$). На рис. 2 приведены типичные осциллограммы тока пучка ускорителей обеих установок, нормированные на площадь апертуры данного датчика, т. е. зависимость плотности тока на оси выводного окна от времени. Длительности импульсов на полувысоте в обоих случаях составляют 2 нс, но их формы и амплитуды заметно различаются. Поскольку в установках используются одинаковые диоды, различия в характеристиках пучков определяются ускоряющими импульсами напряжения.

Энергетический спектр электронного пучка измерялся по ослаблению тока пучка после прохождения тонких фильтров из алюминиевой фольги с различными значениями толщины, устанавливаемых перед входной диафрагмой датчика тока. Таким образом, регистрировались

импульсы напряжения с датчика тока при различных значениях толщины фольги с дискретностью около 10–20 мкм, начиная с максимальной толщины, при которой импульс тока на датчике не наблюдался, до минимального значения. Для каждой толщины фольги осциллограмма от датчика тока регистрировалась пять раз для оценки разброса измеряемой величины. С использованием данных по прошедшему заряду (интегралу импульса тока по времени) при каждой толщине ослабляющей фольги и при использовании известной зависимости поглощенной энергии электронов в алюминии [17] рассчитывались распределение электронов по энергиям и среднее значение энергии. Полученные распределения, аппроксимированные функцией Гаусса, приведены на рис. 3, откуда видно, что электроны, генерируемые РАДАН-300, имеют одномодальное распределение с параметрами аппроксимации $E=168$ кэВ и $\text{FWHM}=103$ кэВ (рис. 3, синяя кривая).

Рис. 3. Распределение электронов по энергиям на установках КЛАВИ... и РИЛС ... и их аппроксимации функциями Гаусса...

Для РАДАН-220 характерно двухмодальное распределение с максимумами энергии при $E_1=152$ кэВ и $E_2=229$ кэВ, при этом величины FWHM для разных мод совпадают и составляют 35 кэВ (рис. 3, черная кривая). Это указывает на то, что РАДАН-220 формирует импульс электронов с двумя пиками, хорошо разрешаемыми по времени (рис. 2б), длительностью 1.1 и 0.75 нс каждый. Первый импульс с плотностью тока $j_1=71.3$ А/см² и энергией электронов $E_1=152$ кэВ формируется прямым импульсом напряжения на катоде электронной трубки, а второй с плотностью $j_2=82.2$ А/см² и средней энергией $E_2=229$ кэВ – отраженным импульсом напряжения. В РАДАН-300 электронные пучки, формируемые прямым и отраженным импульсами напряжения, сливаются, формируя один импульс электронов с плотностью тока $j=130$ А/см². Средние энергии, посчитанные из полученных распределений, составили 170 кэВ для установки КЛАВИ и 210 кэВ для установки РИЛС с учетом статистических весов двух компонент.

Поглощенные дозы (D) для обоих ускорителей рассчитывались по формуле

$$D = \frac{W}{\rho d_e} \quad (1)$$

где $\rho = 1.5$ г/см³ – плотность твердого SGD, W – плотность энергии в импульсе электронов, d_e – средняя глубина проникновения электронов пучка в вещество, рассчитанная через экстраполированный пробег.

При одномодальном распределении электронного пучка ускорителя ($E=170$ кэВ) плотность энергии и глубина проникновения равны $W=44.2$ мДж/см² и $d_e \approx 190$ мкм. При таких параметрах поглощенная доза для каждого импульса электронов ускорителя составляет $D \approx 1.54$ кГр. Электронный пучок ускорителя на базе РАДАН-220 имеет два пика с разницей по времени 1.1 нс. Глубина проникновения электронов первого потока электронов с $E_1=152$ кэВ

в образец твердого SGD составляет $d_{e1} \approx 180$ мкм, а второго с $E_2 = 229$ кэВ – $d_{e2} \approx 325$ мкм. Максимальная поглощенная доза достигается в зоне образца толщиной d_{e1} . Можно грубо оценить, что в этой зоне образца выделяется энергия обоих потоков электронов $W = W_1 + W_2(d_{e1}/d_{e2}) = 19.7$ мДж/см², а поглощенная доза каждого импульса электронов с такой энергией приблизительно равна $D \approx 730$ Гр.

В растворах, когда масса навески сульфатуанидина на несколько порядков меньше массы воды, основным поглотителем излучения является вода. В этом случае при использовании установки КЛАВИ глубина проникновения электронов в раствор и поглощенная доза равны 300 мкм и 1473 Гр. При использовании РИЛС оценка, проведенная в соответствии с приведенной выше методикой, для твердого образца дает значения $d_{e1} \approx 300$ мкм и $D \approx 750$ Гр.

Блок приема люминесцентной информации на обеих установках представляет собой конструкцию, в составе которой находятся спектрограф и многоканальный фотодетектор, представляющий собой соединение электронно-оптического преобразователя (ЭОП) и линейной ПЗС-матрицы (ПЗС – прибор с зарядовой связью). Для передачи потока люминесценции из аналитической кюветы ускорителя на вход спектрографа используется кварцевый семижильный световод, который сам формирует щель за счет уложенных в линию жил. На другом конце световода жилы собраны в круг и помещены в металлическую трубку. Через волоконную планшайбу ЭОП, промежуточную планшайбу и планшайбу ПЗС усиленное изображение спектра с экрана ЭОП попадает на фоточувствительную поверхность ПЗС-матрицы и преобразуется в фотоэлектронный сигнал, а затем в аналоговый электрический сигнал. Аналоговый сигнал с каждого элемента ПЗС оцифровывается и поступает в компьютер. В памяти компьютера возникает цифровое отображение спектра, которое обрабатывается специальной программой отображения и обработки спектров CLAM [18].

Несмотря на то, что установки КЛАВИ и РИЛС оснащены отдельными блоками регистрации ИКЛ, в настоящей работе для сравнительного исследования целесообразно было использовать один и тот же фотоприемник. Спектр ИКЛ регистрировался в диапазоне 350–850 нм в режиме интегрирования по времени:

$$I(\lambda) = \frac{1}{N} \int_{T_1}^{T_2} i(\lambda, t) dt. \quad (2)$$

Здесь $i(\lambda, t)$ – текущая интенсивность свечения, T_1 и T_2 – начало и конец регистрации, $\Delta T = 50$ мс – экспозиция, N – число импульсов, по которым проводилось усреднение спектральной информации. Люминесценция регистрировалась со всей облучаемой поверхности образца в воздухе при комнатной температуре. Частота следования импульсов составляла 1 Гц. Погрешность измерения длины волны не превышала 0.5 нм.

В табл. 1 приведены данные по количеству импульсов облучения растворов, а также таблеток SGD с учетом усреднения импульсов (N в формуле (2)) для регистрации спектров ИКЛ. На обеих установках общее количество импульсов облучения было одинаковым. Из общего количества 50 импульсов сначала по трем импульсам регистрируется спектр до общего облучения (минимальное количество, по которому можно записать адекватный спектр), т.е. одновременно происходит облучение и регистрация, затем образец облучается 44 импульсами (спектр не регистрируется), и по последним трем импульсам регистрируется спектр, соответствующий 50 импульсам.

Таблица 1. Условия облучения и регистрации спектров ИКЛ SGD в жидком и твердом состояниях на установках КЛАВИ и РИЛС

Число импульсов облучения	Таблетки SGD (облучение и регистрация спектров ИКЛ)	
	Число импульсов усреднения N (регистрация спектра)	Число импульсов облучения
50	3	
		44
	3	
100		47
	3	
200		97
	3	
400		197
	3	
800		397
	3	
1600		797
	3	
3200		1597
	3	

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

3.1. Трансформация водных растворов SGD

Спектры поглощения водных растворов SGD до и после облучения на установках КЛАВИ и РИЛС приведены на рис. 4. В обоих случаях до облучения наблюдается характерная полоса поглощения на длине волны 259 нм, которая соответствует электронному переходу $S_0 \rightarrow S_3(\pi\pi)$ [19–21]. Облучение на обеих установках приводит к ожидаемому спаду интенсивности этой полосы поглощения SGD при увеличении количества импульсов, но спад был неодинаков. Кроме того, в спектрах поглощения после облучения растворов наблюдалось качественное изменение, характеризующееся появлением новых областей. Так, облучение 400

импульсами на КЛАВИ приводило к возникновению дополнительного интенсивного поглощения на широкой полосе, простирающейся вплоть до значений, равных 450 нм. Менее интенсивное поглощение в этой области наблюдалось при облучении на установке РИЛС уже после 50 импульсов.

Рис. 4. Спектры поглощения SGD в воде до и после облучения электронным пучком на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б, в)

Спектры флуоресценции основной полосы на длине волны 344 нм ($\lambda_{\text{возб}}=260$ нм) различались разным поведением спада интенсивностей в зависимости от количества импульсов (рис. 5). После облучения растворов на установке КЛАВИ вплоть до 200 импульсов происходил постепенный спад интенсивности полосы (рис. 5а), далее при 400 импульсах флуоресценция падала, и после 800 импульсов облучения полоса совсем пропадала. На установке РИЛС исследуемые растворы при повторении экспериментов имели разные интенсивности полос при одном и том же количестве импульсов облучения (рис. 5б, в), рис. 5г более наглядно это демонстрирует. При этом полосы поглощения (рис. 4б, в) показывали повторяющуюся тенденцию к спаду.

Рис. 5. Спектры флуоресценции SGD в воде при $\lambda_{\text{возб}}=260$ нм, зарегистрированные до и после

Регистрация флуоресценции при ее возбуждении с дискретностью 10 нм показала наличие четырех близкорасположенных полос. Флуоресценция, возбуждаемая при длине волны 320 нм (рис. 6), демонстрировала одновременное поведение двух полос с центрами при значениях 400 и 425 нм. На установке КЛАВИ длительное облучение приводило к их исчезновению, в отличие от установки РИЛС. Здесь приведен повторный эксперимент, который показывает разнообразное поведение интенсивностей этих полос, где в одном случае при облучении 800 импульсами интенсивности полос в областях 400 и 425 нм снижались до минимальных значений, а в другом случае – полосы еще интенсивно флуоресцировали.

Рис. 6. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным пучком

На рис. 7 приведена следующая широкая неэлементарная полоса флуоресценции ($\lambda_{\text{возб}}=340$ нм), центрирование которой начиналось после 400 импульсов облучения с преобладающим максимумом в спектральной области около 450 нм. На установке КЛАВИ облучение приводило сначала к ее появлению, росту, а затем к спаду. Поведение флуоресценции образцов при использовании установки РИЛС в разных экспериментах снова оказалось случайным.

Рис. 7. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным

Еще одна полоса флуоресценции была зафиксирована на длине волны 475 нм ($\lambda_{\text{возб}}=380$ нм). Ее интенсивность при увеличении количества импульсов облучения на установке КЛАВИ сначала нарастала, затем, когда был пройден максимум после 400 импульсов облучения,

интенсивность начинала спадать (рис. 8а). Разнообразное поведение этой полосы наблюдалось при использовании установки РИЛС, вплоть до того, что интенсивность полосы практически не изменялась в зависимости от количества импульсов облучения.

Рис. 8. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным

Таким образом, спектры флуоресценции и возбуждения показали, что использование обеих установок для облучения растворов SGD привело к исчезновению флуоресценции основной полосы на длине волны 344 нм ($\lambda_{\text{возб}}=260$ нм) и образованию четырех полос на длинах волн 400 нм ($\lambda_{\text{возб}}=320$ нм), 425 нм ($\lambda_{\text{возб}}=320$ нм), 450 нм ($\lambda_{\text{возб}}=340$ нм) и 475 нм ($\lambda_{\text{возб}}=380$ нм). При облучении на установке КЛАВИ изменение интенсивностей полос флуоресценции основного вещества и продуктов трансформации происходило согласно дозовой нагрузке на вещество, чего не наблюдалось на установке РИЛС (при ее использовании поведение интенсивностей наблюдаемых полос носило произвольный характер).

Общее содержание фенолов (TPC) в водных растворах SGD после облучения электронным пучком на установках КЛАВИ и РИЛС представлено в табл. 2. Для определения общего содержания фенольных соединений использовали методику с применением реактива Фолина–Чокальтеу [22].

Таблица 2. Общее содержание фенолов в водных растворах SGD после облучения электронным пучком на установках КЛАВИ и РИЛС

Количество импульсов	КЛАВИ	РИЛС
	TPC, мг ЭКГ/г	
0	91.65	90.19
50	99.49	140.37
100	106.25	118.84
200	201.33	138.81
400	67.38	84.52
800	55.62	40.79
1600	33.27	51.64
3200	32.10	26.55

Видно, что в растворах, облученных на обеих установках, остались фенольные соединения, но их содержание уменьшилось примерно в 3 раза по сравнению с содержанием в растворе до облучения. При использовании установки КЛАВИ общее содержание фенолов изменялось экстремально, максимум регистрировался после 200 импульсов облучения. В то же время этот показатель при облучении растворов на установке РИЛС изменялся произвольным образом. Стоит отметить, что растворы в процессе облучения изменяли цвет. До облучения они были бесцветными, затем приобретали желтый оттенок, в основном, после облучения 400 импульсами, и при дальнейшем облучении снова обесцвечивались.

3.2. Трансформация твердого SGD

Спрессованный в таблетку SGD в процессе облучения также изменял свой цвет. На рис. 9 приведены фотографии образцов до и после облучения на КЛАВИ и РИЛС. Видно, что после облучения на КЛАВИ происходило равномерное менее интенсивное окрашивание поверхности прессовки, в отличие от РИЛС, где наблюдалось более глубокое затемнение в середине образца. Многократное повторение экспериментов по облучению также показало различие по интенсивности окрашивания образцов после облучения на разных установках. С обратной стороны прессовки цвет оставался таким же, как у необлученного образца.

Рис. 9. Фотографии таблеток до (а) и после облучения на установках КЛАВИ (б) и

В процессе облучения таблеток SGD были зарегистрированы спектры ИКЛ. На рис. 10а, б в шкалах волновых чисел фотонов приведены спектры, полученные на двух установках. Небольшое обрезание коротковолновой области контура полосы обусловлено краем чувствительности фотоприемной аппаратуры. Аппроксимация полосы была проведена одной гауссовой составляющей ($r^2 > 0.98$). Средняя длина волны максимума полосы, полученная при аппроксимации, равна 425 нм.

Рис. 10. Спектры ИКЛ таблетки SGD, зарегистрированные на установках КЛАВИ (а)

Самый интенсивный спектр соответствовал минимальному облучению электронным пучком (3 импульса), далее происходило его убывание в соответствии с дозовой нагрузкой на образцы. Зависимости интенсивности полосы при длине волны 425 нм для обеих установок приведены на рис. 10в. Коэффициенты трансформации посчитаны из аппроксимации кривых спада рис. 10в одноэкспоненциальной функцией ($r^2 > 0.97$), они равны 0.0076 (для КЛАВИ) и 0.0180 (для РИЛС). Таким образом, можно сказать, что трансформация таблетки SGD на установке РИЛС происходила быстрее, более чем в 2 раза. На рис. 10а, б синей кривой показаны спектры от тех же самых облученных максимальной дозой таблеток, но зарегистрированные через неделю после их облучения (таблетки находились при комнатных условиях). Видно, что происходило увеличение интенсивности по сравнению с минимальным значением, зарегистрированным при облучении 3200 импульсами, и проявление полосы с центром при значении 450 нм.

Рентгенограммы таблеток до и после воздействия были получены методом порошковой дифракции. После облучения спрессованные таблетки подвергались измельчению. Окрашенные частицы поверхности перемешивались с частицами остального объема пробы, которые не были окрашены. В результате была получена смесь облученных и необлученных частиц. Рентгенофазовый анализ (РФА) проводился только для таблетки, облученной на установке КЛАВИ. Было показано, что сульфатуанидин до облучения представлен кристаллической структурой $C_7H_{10}N_4O_2S \cdot H_2O$ с пространственной группой $P2_1/c$ моноклинной

сингонии. После облучения значимых различий в дифрактограммах не было найдено, но область когерентного рассеяния при этом уменьшилась почти в 2 раза.

Сравнение ИК-спектров диффузного отражения таблеток до и после облучения (рис. 11) показало особенности, связанные с воздействием электронного пучка. В области $1200\text{--}1300\text{ см}^{-1}$ после облучения исчезла линия при волновом числе 1259 см^{-1} , также заметно изменение поглощения кристаллической водой.

Рис. 11. ИК-спектры диффузного отражения таблетки SGD...

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Известно [23], что кристаллическая структура моногидрата SGD характеризуется наличием одной молекулы воды на каждую молекулу вещества. При этом имеются две гидратные формы с пространственными группами $P2_1/c$ (наличие двух разных таутомеров) и $P2_1$. Обе моногидратные структуры образуют пять сильных связующих взаимодействий, способствующих высокой стабильности данных гидратов. Основные особенности включают наличие слоистой упаковки, стабилизированной гидрофобными взаимодействиями между фенольными кольцами и образованием трехмерной сетки водородных связей. В работе [23] проводилась дегидратация моногидрата SGD ($P2_1/c$). Для анализа использовались методы TGA и DSC, а также ИК-спектроскопия с нагревом. Было показано, что обезвоживание начинается примерно при температуре $65\text{ }^{\circ}\text{C}$ и завершается примерно при температуре $130\text{ }^{\circ}\text{C}$. Дальнейшее нагревание привело к плавлению SGD в диапазоне температур $188.5\text{--}189\text{ }^{\circ}\text{C}$, что соответствует температуре плавления ангидратной формы SGD. Было зафиксировано, что данный фазовый переход сопровождается изменением в ИК-спектрах, а именно, пропадает линия в области $1200\text{--}1300\text{ см}^{-1}$.

Согласно РФА, наши образцы до облучения имели форму моногидрата SGD с пространственной группой $P2_1/c$. При такой упаковке вода образует водородные связи с аминогруппами, способствуя образованию упорядоченной сети связей внутри кристалла. Под воздействием электронного пучка происходило окрашивание таблеток в черный цвет, что сопровождается фазовым переходом и изменением кристаллической структуры. Как и в работе [23], в спектрах ИК-поглощения в облученных образцах отсутствовали линии при волновом числе 1259 см^{-1} . Кроме того, изменялось количественное поглощение кристаллической водой (рис. 11). Таким образом, облучение электронным пучком приводит к разрыву межмолекулярных связей, а именно водородных связей с кристаллической водой, формированию новой сетки водородных связей между молекулами и иной упаковке кристаллов в виде ангидрата. Существование внутримолекулярных водородных связей в этой структуре возможно благодаря наличию двух форм амидной связи, которая стабилизирует структуру.

Исходя из сказанного выше, можно предположить, что природа спектров ИКЛ обусловлена свечением “разорванных” с водой молекул SGD в различных структурных позициях, где была образована эта связь. Широкая полоса ИКЛ при длине волны 425 нм не является элементарной, а представляет собой суперпозицию нескольких полос, образованных в результате люминесценции дефектных структур, которые сформировались в различных участках разрывов водородных связей с кристаллической водой. При увеличении количества импульсов облучения происходит формирование нелюминесцирующей формы ангидрата (черный цвет), причем трансформация SGD в твердом состоянии на РИЛС происходит быстрее более чем в 2 раза, чем на установке КЛАВИ. Заметим, что после того, как облученный SGD находился неделю в условиях окружающей среды, интенсивность спектра ИКЛ (рис. 10а, б) увеличилась. Вероятно, снова образовались водородные связи SGD с водой. Об этом говорят асимметричность спектра и смещение значений длины волны в длинноволновую область. Скорее всего, восстановление водородных связей происходит на поверхности образца.

В водных растворах полоса на длине волны 344 нм обусловлена флуоресценцией молекул SGD, связанных с водой. Одновременно после облучения возникает флуоресценция продуктов трансформации SGD, проявляющаяся четырьмя характерными полосами в спектре на длинах волн 400, 425, 450 и 475 нм. Все эти полосы флуоресценции попадают в диапазон зарегистрированной полосы ИКЛ. Это неудивительно, так как природа полос одна и та же – молекулярные структуры с разорванными водородными связями. Только в отличие от твердого состояния, водородные связи в воде не восстанавливаются. В процессе облучения вода подвергается радиолизу, образуются продукты радиолиза, которые активно участвуют в процессе трансформации, тем более, когда сильные связи молекул SGD с водой разорваны. Поэтому нам удалось зафиксировать флуоресценцию продуктов трансформации. Несмотря на кажущееся отсутствие поглощения в области значений 450 нм (рис. 4), полоса флуоресценции проявляется примерно при значении 525 нм (рис. 12). Максимум этой полосы наблюдается на 400 импульсах (КЛАВИ), именно при таком облучении наблюдается самый насыщенный желтый цвет. Затем полоса уменьшается до нуля, и образец обесцвечивается. Использование установки РИЛС для облучения растворов не приводит к сильным изменениям интенсивности полосы при длине волны 525 нм, но при облучении 1600 импульсами эта полоса исчезает.

Рис. 12. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным

При многократном проведении экспериментов на установке КЛАВИ поведение спектральных характеристик облученного раствора с изменением дозовой нагрузки повторяется, в то время как при повторных экспериментах на РИЛС результаты не повторяются, а носят стохастический характер. В случае твердого вещества на этой установке

трансформация происходит быстрее более чем в 2 раза, несмотря на меньшую рассчитанную поглощаемую дозу. Мы предполагаем, что такое поведение связано с двухмодальностью распределений тока и энергии электронов пучка на установке РИЛС, а именно, поток электронов, соответствующий второй моде и следующий через интервал 1.1 нс после первого потока, попадает в ионизованную частично заряженную среду, в которой происходят процессы рекомбинации и стока заряда. Поэтому в растворе, где концентрация SGD низкая, это приводит к тому, что доминирующий механизм взаимодействия электронов второго потока с такой средой будет носить случайный характер. В твердом (концентрированном) веществе фактическая глубина проникновения электронов, соответствующих второй моде, несмотря на большую энергию, будет гораздо меньше, так как электроны второго потока будут в первую очередь взаимодействовать с уже образованной ионизованной средой. Это, в свою очередь, приводит к уменьшению размера поглощающего слоя и, соответственно, к увеличению дозы (по сравнению с рассчитанной) и скорости трансформации. Физические механизмы взаимодействия пучка электронов с ионизованной конденсированной средой требуют более глубокого изучения.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Данное исследование выявило зависимость трансформации сульфатуанидина в твердом и растворенном состояниях от распределения электронов по току и энергиям. Показано изменение кристаллической структуры с моногидратной до ангидратной формы при облучении электронным пучком. Воздействие электронного пучка, имеющего двухмодальное распределение, трансформирует SGD быстрее, чем воздействие одномодального электронного пучка с большей поглощенной дозой. В растворе, где концентрация вещества мала, трансформация сульфатуанидина на КЛАВИ является стабильной, в отличие от РИЛС. Таким образом, при разработке ускорителей такой параметр, как распределение электронов по току и энергиям, важен, и он должен быть представлен при характеристике ускорителей.

Кроме того, в работе показано, что ИКЛ фиксирует фазовое превращение сульфатуанидина. В исходном состоянии в SGD имеют место сильные водородные связи с молекулами воды, причем эта форма является очень стабильной. Облучение электронным пучком приводит к разрыву водородных связей, обезвоживанию моногидрата и формированию другой кристаллической структуры – ангидрата. Это может быть использовано при оценке стабильности данного вещества при различных значениях температурах и влажности.

ФИНАНСИРОВАНИЕ

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда и Правительства Свердловской области (проект РНФ № 24-19-20031). Авторы выражают благодарность ИЭФ УрО РАН за предоставление высоковольтного оборудования, разработанного ранее в рамках государственного задания, и измерительных приборов из Центра коллективного пользования института.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Renarda S., Parent L., de Marzi L., Tsoutsou P., Kirova Y.* Cancer Radiothér. 2024. V. 28. P. 553. <https://doi.org/10.1016/j.canrad.2024.07.013>
2. *Паршенков М.А., Сковородко П.П., Петрусевич Д.А. и др.* Вестник РУДН. Серия: Медицина. 2025. Т. 29. № 3. С. 283 <https://doi.org/10.22363/2313-0245-2025-29-3-283-301>
3. Review of Radiation Oncology Physics: A Handbook for Teachers and Students. Ed. by E.B. Podgorsak. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 2003.
4. *Silindir M., Özer A.Y.* Fabad J. Pharm. Sci. 2009. V. 34. P. 43.
5. *Mittendorfer J., Gallnböck-Wagner B.* Radiat. Phys. Chem. 2020. V. 173. P. 108870. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2020.108870>
6. *Komarova E.G., Akimova E.B., Mikhailenko M.A. et al.* Surf. Interfaces. 2025. V. 72. P. 107354. <https://doi.org/10.1016/j.surfin.2025.107354>
7. *Sokovnin S.Yu., Donnik I.M., Shkuratova I.A. et al.* J. Phys.: Conf. Ser. 2018. V. 1115. № 2. P. 022034. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1115/2/022034>
8. *Li Ch., Zhang R., Sogore T. et al.* Sustain. Food Technol. 2025. V. 3. P. 875. <https://doi.org/10.1039/d5fb00006h>
9. *Valkov S., Kotlarski G., Parshorov S. et al.* Coatings. 2025. V. 15. P. 477. <https://doi.org/10.3390/coatings15040477>
10. *Zhou J., Xu W., Zhao N., Liu X.* Ann. Nucl. Energy. 2026. V. 227. Part B. P. 112019. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2025.112019>
11. *Загулов Ф.Я., Котов А.С., Шнак В.Г., Юрике Я.Я., Яландин М.И.* ПТЭ. 1989. № 2. С. 146.
12. *Mesyats G.A., Korovin S.D., Rostov V.V., Shpak V.G., Yalandin M.I.* Proc. IEEE. 2004. V. 92. № 7. P. 1166. <https://doi.org/10.1109/jproc.2004.829005>
13. *Sharypov K.A., Shpak V.G., Shunailov S.A., Yalandin M.I.* Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2025. V. 89. №. 9. P. 1663. <https://doi.org/10.1134/S1062873825712395>
14. *Solomonov V.I., Michailov S.G., Lipchak A.I. et al.* Laser Phys. 2006. V. 16. № 1. P. 126. <https://doi.org/10.1134/s1054660x06010117>

15. *Bezlepkin N.P., Bocharnikova E.N., Tchaikovskaya O.N. et al.* J. Fluoresc. 2025. V. 35. P. 1949. <https://doi.org/10.1007/s10895-024-03640-w>
16. *Спирина А.В., Чайковская О.Н., Бочарникова Е.Н., Соломонов В.И., Юдина Н.В.* Журнал прикладной спектроскопии, 2026. Т. 93. № 1. С. 114. <https://elibrary.ru/item.asp?id=88810859>
17. *Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братковский А.М. и др.* Физические величины: справочник. Под редакцией И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. Москва: Энергоатомиздат, 1991.
18. *Липчак А.И.* РФ, свидетельство о госрегистрации программы для ЭВМ № 2017613947. 2017.
19. *Bezlepkin N.P., Bocharnikova E.N., Tchaikovskaya O.N. et al.* J. Fluoresc. 2024. Т. 35. P. 1949. <https://doi.org/10.1007/s10895-024-03640-w>
20. *Безлепкина Н.П., Чайковская О.Н., Бочарникова Е.Н.* Известия РАН. Серия физическая. 2024. Т. 88. № 6. С. 952. <https://doi.org/10.31857/S0367676524060178>
21. *Безлепкина Н.П., Чайковская О.Н., Бочарникова Е.Н., Базыль О.К.* Оптика и спектроскопия. 2023. Т. 131. № 4. С. 543. <http://dx.doi.org/10.21883/OS.2023.04.55560.4388-22>
22. *Tchaikovskaya O., Bocharnikova E., Bezlepkin N. et al.* Chemosphere. 2025. V. 386. P. 144602. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2025.144602>
23. *Widauer A., Petrick T.L., Braun D.E.* Cryst. Growth Des. 2024. V. 24. P. 1438. <https://doi.org/10.1021/acs.cgd.3c01384>

ПОДПИСИ К РИСУНКАМ

Рис. 1. Структурная формула сульфатуанидина

Рис. 2. Схематическое изображение ускорителей установок КЛАВИ (а) и РИЛС (б) и нормированные осциллограммы тока их электронных пучков: 1 – первичная, 2 – вторичная обмотки трансформатора Тесла, 3 – магнитопроводы, 4 – разрядник, 5 – электронная трубка ИМА3-150Э, 6 – коллекторный датчик тока, 7 – фольга

Рис. 3. Распределение электронов по энергиям на установках КЛАВИ (синие точки) и РИЛС (черные точки) и их аппроксимации функциями Гаусса (сплошные линии)

Рис. 4. Спектры поглощения SGD в воде до и после облучения электронным пучком на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б, в). Цифрами указано количество импульсов облучения

Рис. 5. Спектры флуоресценции SGD в воде при $\lambda_{\text{возб}}=260$ нм, зарегистрированные до и после облучения на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б, в). Зависимость интенсивности полосы от количества импульсов на длине волны 344 нм (г)

Рис. 6. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным пучком ($\lambda_{\text{возб}}=320$ нм) на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б, в). Цифрами указано количество импульсов облучения

Рис. 7. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным пучком с $\lambda_{\text{возб}}=340$ нм на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б, в). Цифрами указано количество импульсов облучения

Рис. 8. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным пучком с $\lambda_{\text{возб}}=380$ нм на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б, в). Цифрами указано количество импульсов облучения

Рис. 9. Фотографии таблеток до (а) и после облучения на установках КЛАВИ (б) и РИЛС (в)

Рис. 10. Спектры ИКЛ таблетки SGD, зарегистрированные на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б) при разных значениях количества импульсов облучения (синим цветом показаны спектры образцов через неделю) и их аппроксимация и зависимости интенсивности полосы ИКЛ при длине волны 425 нм от количества импульсов облучения на КЛАВИ (красная кривая) и РИЛС (синяя кривая) (в)

Рис. 11. ИК-спектры диффузного отражения таблетки SGD: 1 – после облучения, 2 – до облучения

Рис. 12. Спектры флуоресценции SGD в воде до и после облучения электронным пучком $\lambda_{\text{возб}}=450$ нм на установках КЛАВИ (а) и РИЛС (б). Цифрами указано количество импульсов облучения

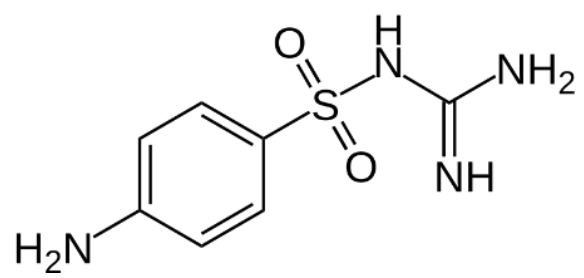


Рис. 1.

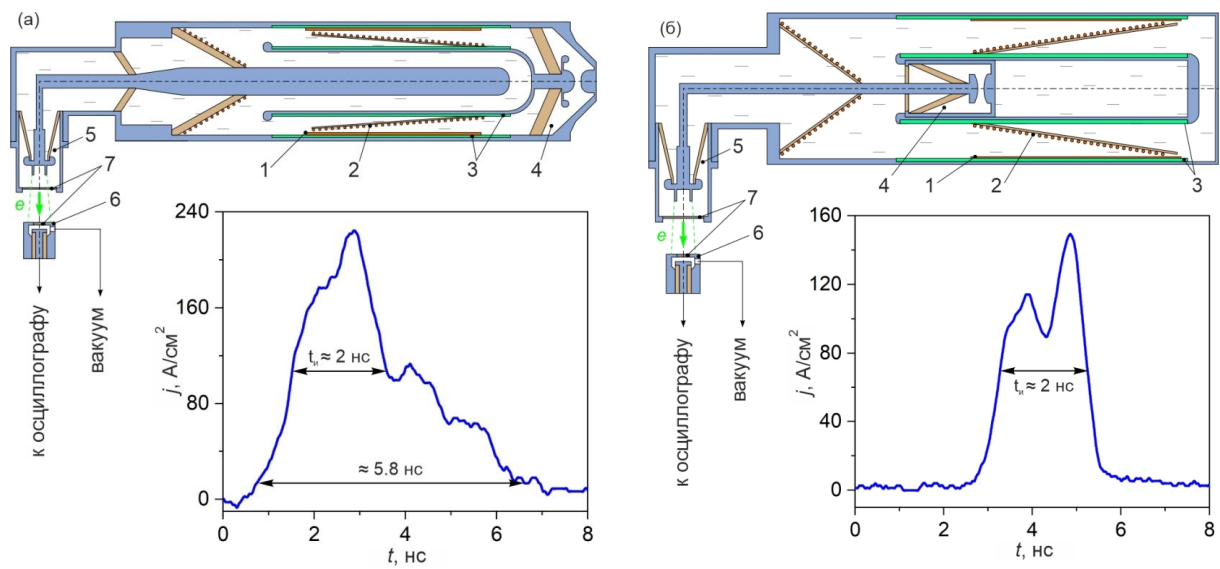


Рис. 2.

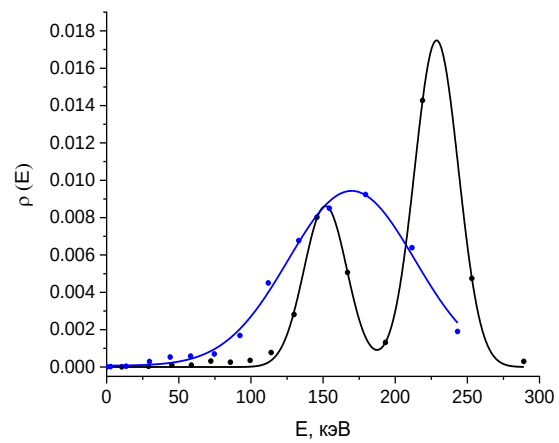
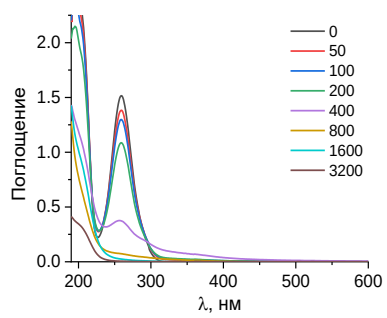
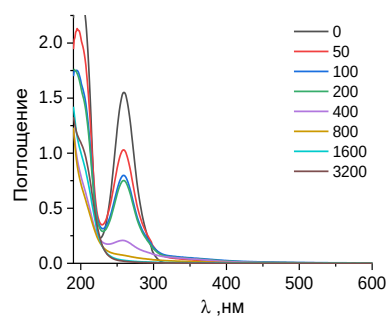


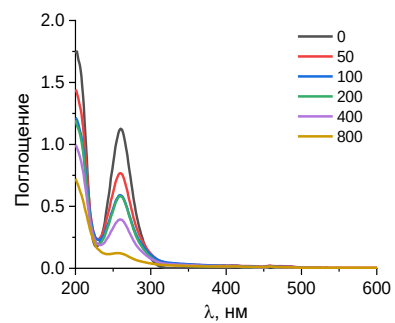
Рис. 3.



(a)

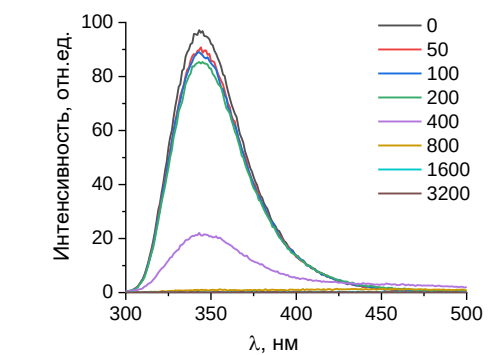


(б)

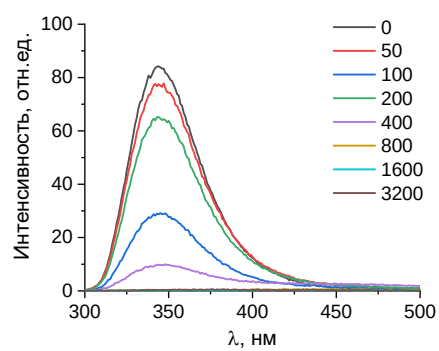


(в)

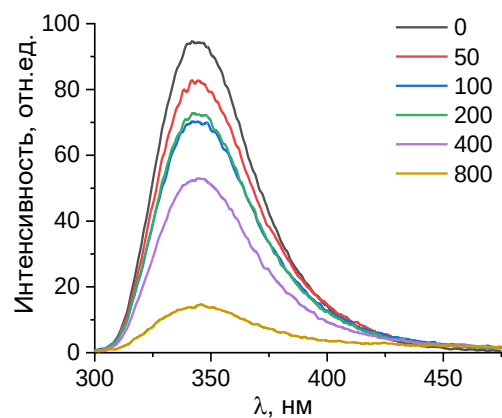
Рис. 4.



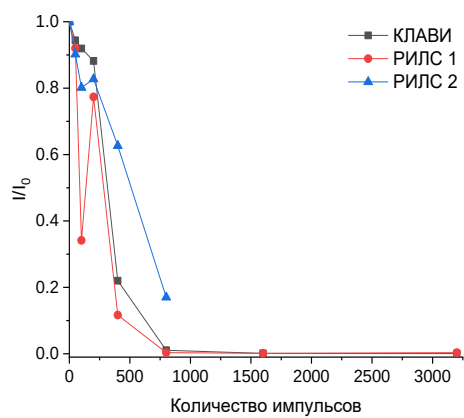
(а)



(б)

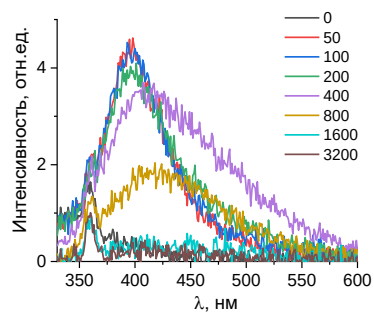


(в)

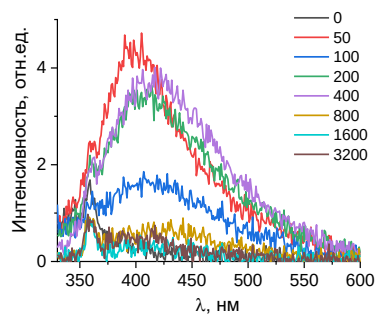


(г)

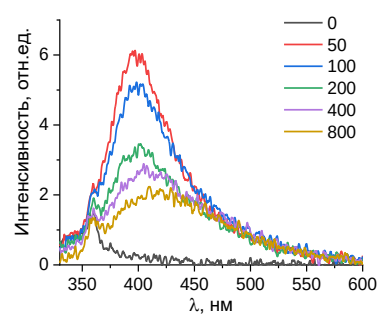
Рис. 5.



(a)

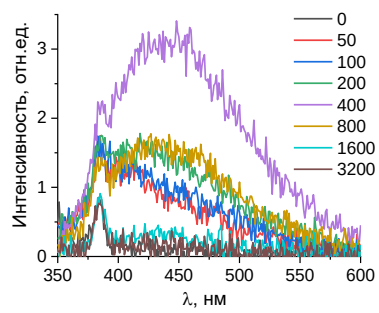


(б)

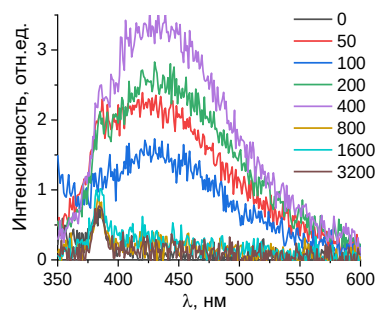


(B)

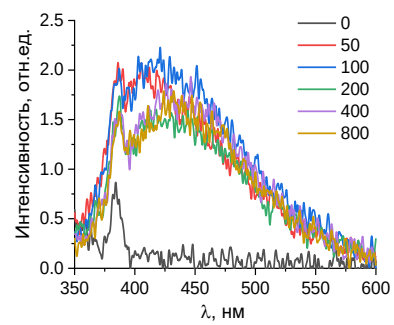
Рис. 6.



(a)

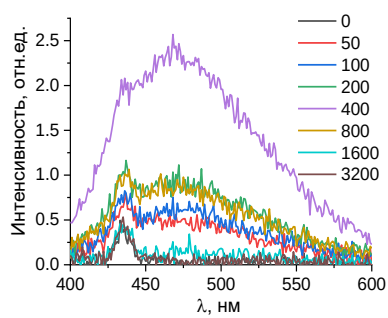


(б)

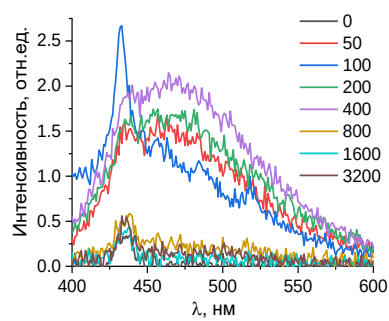


(в)

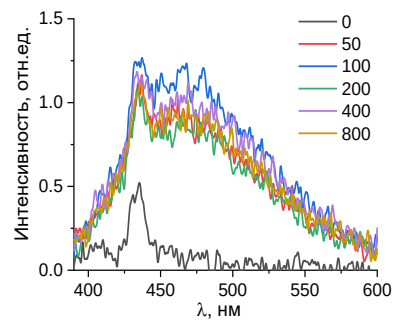
Рис. 7.



(a)



(б)

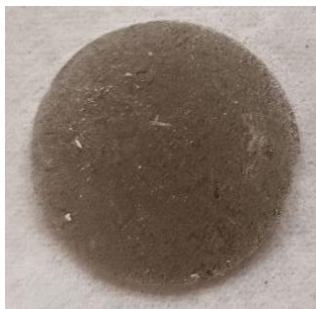


(в)

Рис. 8.



(a)

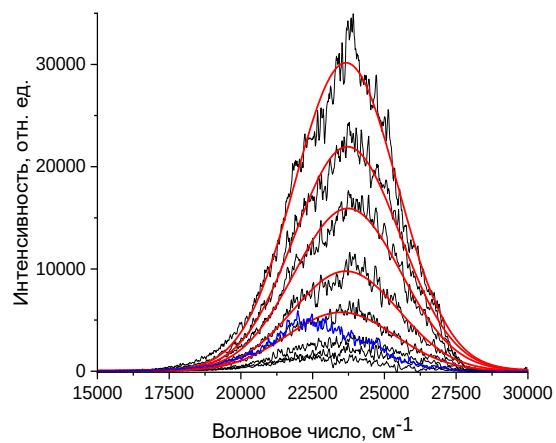


(б)

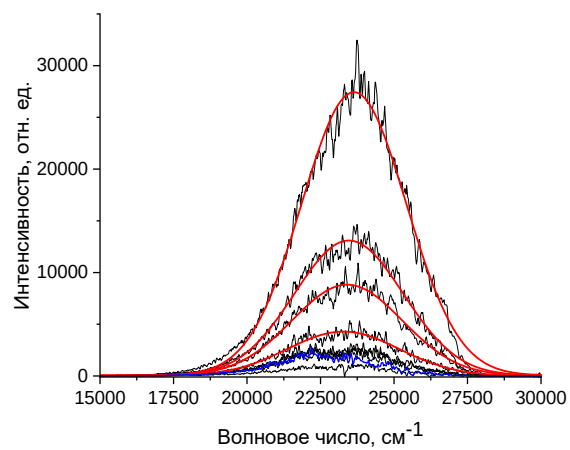


(в)

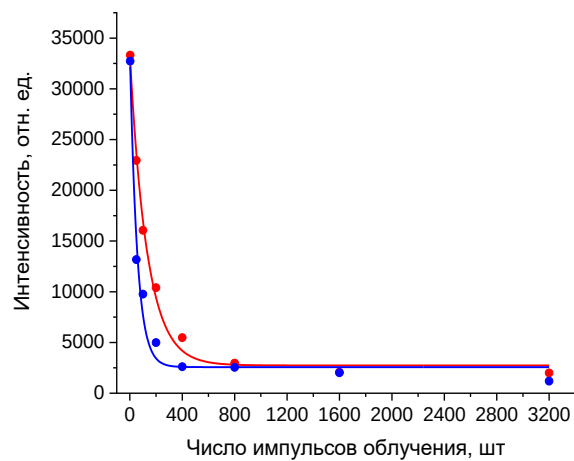
Рис. 9.



(a)



(б)



(в)

Рис. 10.

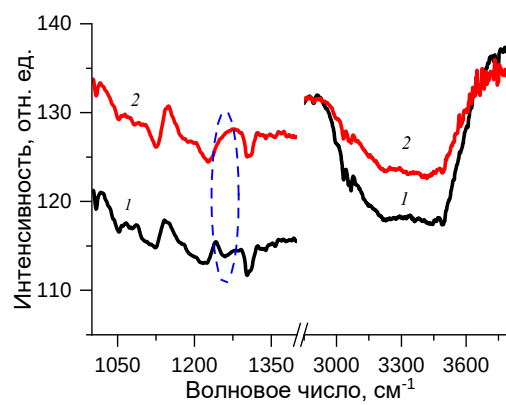
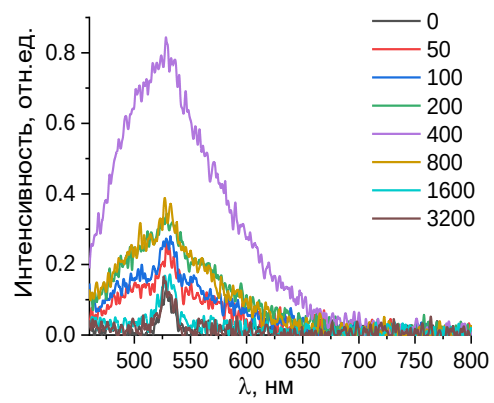
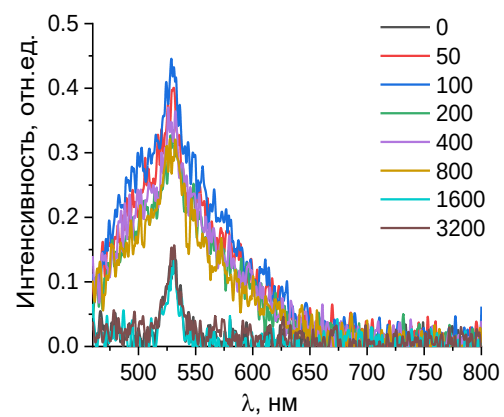


Рис. 11.



(a)



(б)

Рис. 12.