

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
Одеський національний університет імені І. І. Мечникова

MINISTRY OF EDUCATION AND SCIENCE OF UKRAINE  
Odessa I. I. Mechnikov National University

**СЕНСОРНА  
ЕЛЕКТРОНІКА  
І МІКРОСИСТЕМНІ  
ТЕХНОЛОГІЇ  
2017 — Т. 14, № 4**

*Науково-технічний журнал*

Заснований 13.11.2003 року.  
Виходить 4 рази на рік

УДК 681.586

Засновник Одеський національний  
університет імені І. І. Мечникова

За підтримки Українського фізичного товариства

Свідоцтво про державну реєстрацію КВ № 8131

Журнал входить до переліку фахових видань  
ВАК України з фізико-математичних,  
технічних та біологічних наук

Журнал реферується РЖ «Джерело»  
і ВІНІТІ (Росія), включено в міжнародні бази  
Index Copernicus, РІНЦ, наукова електрон-  
на бібліотека Cross Ref. Elibrary, Directory of  
Research Journal Indexing, General Impact Factor

Видається за рішенням Вченої ради  
Одеського національного університету  
імені І. І. Мечникова  
*Протокол № 4 від 19 грудня 2017 р.*

Адреса редакції:  
вул. Дворянська, 2, МННФТЦ (НДЛІ-3),  
Одеський національний університет  
імені І. І. Мечникова, Одеса, 65082, Україна.  
Тел./Факс: +38(048)723-34-61

**SENSOR  
ELECTRONICS  
AND MICROSYSTEM  
TECHNOLOGIES  
2017 — VOL. 14, № 4**

*Scientific and Technical Journal*

It is based 13.11.2003 року.  
The Journal issue four times a year

UDC 681.586

Founded by Odessa I. I. Mechnikov  
National University

At support of the Ukrainian Physical Society

Certificate of State Registration KB № 8131

The Journal is a part of list of the issues  
recommended by SAK of Ukraine on physical and  
mathematical, engineering and biological sciences

The Journal is reviewed by RJ «Djerelo»  
and RJ ICSTI (Russia), is included in the  
International Base Index Copernicus, RSCI,  
Cross Ref. Elibrary, Directory of Research  
Journal Indexing, General Impact Factor

Publishes on the resolution of Odessa  
I. I. Mechnikov National University  
Scientific Council. *Transaction № 4,  
December, 19, 2017*

Editorial address:  
2, Dvoryanskaya Str., ISEPTC (RL-3),  
Odessa I. I. Mechnikov National University,  
Odessa, 65082, Ukraine.  
Ph./Fax: +38(048)723-34-61

## Редакційна колегія

Головний редактор – **В. А. Сминтина**  
Заступник головного редактора – **Я. І. Леніх**  
**А. П. Балабан** (Одеса, Україна)

відповідальний секретар

**О. Є. Бєляєв** (Київ, Україна)  
**І. В. Блонський** (Київ, Україна)  
**В. Г. Вербицький** (Київ, Україна)  
**Б. М. Галкін** (Одеса, Україна)  
**Ю. В. Гуляєв** (Москва, Росія)  
**Ю. О. Гунченко** (Одеса, Україна)  
**А. Д'Аміко** (Рим, Італія)  
**Н. Джаффрезік Рене** (Ліон, Франція)  
**С. В. Дзядевич** (Київ, Україна)  
**Г. В. Єльська** (Київ, Україна)  
**В. О. Іваниця** (Одеса, Україна)  
**О. М. Калашніков** (Ноттінгем, Велика Британія)  
**І. А. Кравченко** (Одеса, Україна)  
**Є. Д. Крушкін** (Іллічівськ, Україна)  
**Вільхо Лантто** (Оулу, Фінляндія)  
**В. Г. Литовченко** (Київ, Україна)  
**С. В. Ленков** (Київ, Україна)  
**Є. В. Малахов** (Одеса, Україна)  
**І. Г. Неівестний** (Новосибірськ, Росія)  
**О. О. Птащенко** (Одеса, Україна)  
**Д. Д. Ряботягов** (Одеса, Україна)  
**С. М. Рябченко** (Київ, Україна)  
**О. П. Солдаткін** (Київ, Україна)  
**М. Ф. Стародуб** (Київ, Україна)  
**Й. М. Стахіра** (Львів, Україна)  
**М. В. Стріха** (Київ, Україна)  
**О. В. Третяк** (Київ, Україна)  
**А. Чаудхрі** (Чандігар, Індія)

## Editorial Board

Editor-in-Chief – **V. A. Smyntyna**  
Vice Editor-in-Chief – **Ya. I. Lepikh**  
**A. P. Balaban** (Odessa, Ukraine)

responsible editor

**A. E. Belyaev** (Kiev, Ukraine)  
**I. V. Blonskii** (Kiev, Ukraine)  
**V. G. Verbitsky** (Kiev, Ukraine)  
**B. M. Galkin** (Odessa, Ukraine)  
**Yu. A. Gulyaev** (Moscow, Russia)  
**Yu. O. Gunchenko** (Odessa, Ukraine)  
**A. D'Amiko** (Rome, Italy)  
**N. Jaffrezik Renault** (Lyon, France)  
**S. V. Dzyadevych** (Kiev, Ukraine)  
**G. V. Elskaya** (Kiev, Ukraine)  
**V. O. Ivanytsia** (Odessa, Ukraine)  
**O. M. Kalashnikov** (Nottingham, United Kingdom)  
**I. A. Kravchenko** (Odessa, Ukraine)  
**E. D. Krushkin** (Illyichevsk, Ukraine)  
**Vilho Lantto** (Oulu, Finland)  
**V. G. Litovchenko** (Kiev, Ukraine)  
**S. V. Lenkov** (Kiev, Ukraine)  
**E. V. Malakhov** (Odessa, Ukraine)  
**I. G. Neizvestny** (Novosibirsk, Russia)  
**A. A. Ptashchenko** (Odessa, Ukraine)  
**D. D. Ryabotyagov** (Odessa, Ukraine)  
**S. M. Ryabchenko** (Kiev, Ukraine)  
**A. P. Soldatkin** (Kiev, Ukraine)  
**N. F. Starodub** (Kiev, Ukraine)  
**J. M. Stakhira** (Lviv, Ukraine)  
**M. V. Strikha** (Kiev, Ukraine)  
**A. V. Tretyak** (Kiev, Ukraine)  
**A. Chaundhri** (Chandigarh, India)

Науковий редактор випуску  
та відповідальний за випуск – **Я. І. Леніх**

**ЗМІСТ****CONTENTS****Хімічні сенсори****Chemical sensors**

*O. Kutova, M. Dusheyko, T. Obuhova,  
N. Maksimchuk, T. Borodinova, V. Timofeev*

H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> SENSOR BASED ON MOSFET WITH  
ACTIVE BACK-GATE PART  
OF SUBSTRATE ..... 5

*О. Кутова, М. Душейко, Т. Обухова,  
Н. Максимчук, Т. Бородінова, В. Тимофєєв*

СЕНСОР ПЕРЕКИСУ ВОДНЮ  
НА ОСНОВІ МДН-ТРАНЗИСТОРА  
З АКТИВНИМ ШАРОМ В ОБЛАСТІ  
ПІДКЛАДКИ

**Біосенсори****Biosensors**

*Ya. V. Topolnikova, D. V. Knyzhnykova,  
I. S. Kucherenko, S. V. Dzyadevych,  
O. O. Soldatkin*

DEVELOPMENT OF AMPEROMETRIC  
BIOSENSOR SYSTEM FOR  
SIMULTANEOUS DETERMINATION  
OF PYRUVATE AND LACTATE ..... 13

*Я. В. Топольнікова, Д. В. Книжникова,  
І. С. Кучеренко, С. В. Дзядевич,  
О. О. Солдаткін*

РОЗРОБКА АМПЕРОМЕТРИЧНОЇ  
БІОСЕНСОРНОЇ СИСТЕМИ ДЛЯ  
ОДНОЧАСНОГО ВИМІРЮВАННЯ  
ПІРУВАТУ І ЛАКТАТУ

**Матеріали для сенсорів****Sensor materials**

*Y. M. Stakhira*

DEFORMATION MODULATION OF  
ELECTRONIC STATES IN LAYERED  
CRYSTALS..... 27

*Й. М. Стахіра*

ДЕФОРМАЦІЙНЕ МОДУЛЮВАННЯ  
ЕЛЕКТРОННИХ СТАНІВ У ШАРУВАТИХ  
КРИСТАЛАХ

**Сенсори та інформаційні системи****Sensors and information systems**

*O. Yu. Khetselius, A. V. Glushkov,  
Yu. Ya. Bunyakova, V. V. Buyadzhi, O. I. Bondar,  
V. N. Vaschenko, N. Bykowszczenko*

NEW APPROACH AND MICROSYSTEM  
TECHNOLOGY TO MODELLING  
DYNAMICS OF ATMOSPHERE  
VENTILATION OF INDUSTRIAL CITY  
AND ELEMENTS OF THE "GREEN-CITY"  
CONSTRUCTION TECHNOLOGY..... 37

*О. Ю. Хецеліус, О. В. Глушков, Ю. Я. Бунякова,  
В. В. Буюджи, О. І. Бондарь, В. М. Ващенко,  
Н. Биковщенко*

НОВИЙ ПІДХІД І МІКРОСИСТЕМНА  
ТЕХНОЛОГІЯ МОДЕЛЮВАННЯ  
ДИНАМІКИ АТМОСФЕРНОЇ ВЕНТИЛЯЦІЇ  
ПРОМИСЛОВОГО МІСТА ТА ЕЛЕМЕНТИ  
ТЕХНОЛОГІЇ БУДІВНИЦТВА " GREEN-  
CITY"

*A. V. Glushkov, A. V. Romanova, V. V. Buyadzhi,  
E. V. Bakunina, O. Yu. Khetselius,  
A. A. Svinarenko, A. S. Belodonov*

NEW BALANCE APPROACH TO THE  
MODELING OF MACROTURBULENT  
ATMOSPHERIC DYNAMICS, SPATIAL  
DISTRIBUTION OF RADIONUCLIDES  
IN THE GLOBAL ATMOSPHERE, THEIR  
ENVIRONMENT IMPACT AFTER THE  
NUCLEAR ACCIDENT AT FUKUSHIMA  
NUCLEAR POWER PLANT ..... 47

*А. В. Глушков, А. В. Романова, В. В. Буюджи,  
Е. В. Бакунина, О. Ю. Хецеліус,  
А. А. Свинаренко, А. С. Белодонов*

НОВИЙ БАЛАНСОВИЙ ПІДХІД ДО  
МОДЕЛЮВАННЯ МАКРОТУРБУЛЕНТНОЇ  
АТМОСФЕРНОЇ ДИНАМІКИ,

ПРОСТОРОВОГО РОЗПОДІЛУ  
РАДІОНУКЛІДІВ В ГЛОБАЛЬНІЙ  
АТМОСФЕРІ, ЇХ ВПЛИВУ НА  
НАВКОЛИШНЄ СЕРЕДОВИЩЕ ПІСЛЯ  
ЯДЕРНОЇ АВАРІЇ НА АЕС ФУКУСИМА

*V. V. Buyadzhi, A. V. Glushkov, M. Yu. Gurskaya,  
O. Yu. Khetselius, E. B. Ternovsky,  
A. A. Mashkantsev, S. V. Kirianov*

A NOVEL COMBINED CHAOS-  
GEOMETRIC AND VIBRATION BLIND  
SOURCE MONITORING APPROACH TO  
DAMAGE ANALYSIS AND DETECTION OF  
ENGINEERING STRUCTURES (NUCLEAR  
POWER PLANTS) UNDER VARYING  
ENVIRONMENTAL, OPERATIONAL  
CONDITIONS AND EMERGENCY  
ACCIDENTS ..... 60

*B. B. Буяджи, О. В. Глушков, М. Ю. Гурська,  
О. Ю. Хецеліус, Є. В. Терновський,  
О. А. Машканцев, С. В. Кір'янов*

НОВИЙ КОМБІНОВАНИЙ ХАОС-  
ГЕОМЕТРИЧНИЙ ПІДХІД І BLIND  
SOURCE МОНІТОРИНГ ДО АНАЛІЗУ  
І ДЕТЕКТУВАННЯ УШКОДЖЕНЬ  
ІНЖЕНЕРНИХ СТРУКТУР  
(ЯДЕРНІ РЕАКТОРИ) ПРИ ЗМІНІ  
ЕКСПЛУАТАЦІЙНИХ УМОВ, УМОВ  
НАВКОЛИШНЬОГО СЕРЕДОВИЩА,  
АВАРІЙНИХ ІНЦИДЕНТІВ

*Yu. Ya. Bunyakova, V. B. Ternovsky,  
Yu. V. Dubrovskaya, A. V. Ignatenko,  
A. A. Svinarenko, L. A. Vitavetskaya*

ANALYSIS OF THE BERYLLIUM-7  
ACTIVITY CONCENTRATION DYNAMICS  
IN THE ATMOSPHERIC ENVIRONMENT  
TIME SERIES AFTER THE FUKUSHIMA  
DAIICHI NUCLEAR POWER PLANTS  
EMERGENCY ..... 73

*Ю. Я. Бунякова, В. Б. Терновський,  
Ю. В. Дубровська, Г. В. Ігнатенко,  
А. А. Свинаренко, Л. А. Вітаветська*

АНАЛІЗ ДИНАМІКИ КОНЦЕНТРАЦІЇ  
РАДІОНУКЛІДА BERYLLIUM-7 В  
АТМОСФЕРНОМУ СЕРЕДОВИЩУ НА  
ОСНОВІ АНАЛІЗУ ЧАСОВИХ РЯДОВ  
ПІСЛЯ АВАРІЙНОЇ СИТУАЦІЇ НА  
АТОМНІЙ ЕЛЕКТРОСТАНЦІЇ FUKUSHIMA  
DAIICHI

*V. B. Ternovsky, A. V. Glushkov, A. V. Smirnov,  
A. A. Kuznetsova, O. Yu. Khetselius,  
V. V. Buyadzhi*

AN ADVANCED LASER  
PHOTOIONIZATION SEPARATION  
SCHEME FOR RADIOACTIVE ISOTOPES  
AND PRODUCTS OF ATOMIC  
ENERGETICS: URANIUM AND THE  
TRANSURANIUM ELEMENTS ..... 83

*В. Б. Терновський, О. В. Глушков,  
А. В. Смірнов, Г. А. Кузнецова,  
О. Ю. Хецеліус, В. В. Буяджи*

УДОСКОНАЛЕНА ЛАЗЕРНО-  
ФОТОІОНІЗАЦІЙНА СХЕМА  
ПОДІЛЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ  
ІЗОТОПІВ ТА ПРОДУКТІВ АТОМНОЇ  
ЕНЕРГЕТИКИ: УРАН ТА  
ТРАНСУРАНОВІ ЕЛЕМЕНТИ

**Інформація для авторів.  
Вимоги до оформлення  
статей у журнал ..... 94**

**Information for contributors. The  
requirements on papers preparation ..... 97**

# XIMIЧHI CEHCOPИ

---

## CHEMICAL SENSORS

---

---

PACS 07.07.DF UDC 620.3

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.116007>

### **H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> SENSOR BASED ON MOSFET WITH ACTIVE LAYER IN SUBSTRATE AREA**

*O. Kutova<sup>1</sup>, M. Dusheiko<sup>2</sup>, T. Obukhova<sup>2</sup>, N. Maksimchuk<sup>2</sup>, T. Borodinova<sup>3</sup>, V. Tymofeev<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>National technical university of Ukraine “Igor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute”  
03056, Kyiv, 16, Politechnichna str, Electronic engineering department,  
tel. (044) 204-99-09 E-mail: oksana03fel@gmail.com

<sup>2</sup>National technical university of Ukraine “Igor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute”  
03056, Kyiv, 16, Politechnichna str, Microelectronic department,  
tel. (044) 204-99-09 E-mail: t.y.obukhova@gmail.com

<sup>3</sup>F.D. Ovcharenko Institute of Biocolloid Chemistry NAS Ukraine  
03680, Kyiv, 42, Ac Vernadskogo av.,  
tel. (095)-554-37-70. E-mail: borodinova@ua.fm

### **H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> SENSOR BASED ON MOSFET WITH ACTIVE BACK-GATE PART OF SUBSTRATE**

*O. Kutova, M. Dusheyko, T. Obuhova, N. Maksimchuk, T. Borodinova, V. Timofeev*

**Abstract.** Sensors based on MOSFET with por-Si layer at the back-gate part and with H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> catalyst (Pt-nanoparticles) investigation was done. Back-gate changes were done by MASE technology. The porous structure analysis, measurement dimension of Pt nanoparticles was performed. And also we represented the influence thus nanoparticles for sensor sensitivity. Using approximation output curves

at different concentration  $H_2O_2$ , we calculated sensitivity of our sensor and it's reach at least 0,135  $\mu A/ppm$ . The energetic activity of the catalytic reaction  $H_2O_2$  was calculated. And also we calculated the influence of this effect on the experimental results.

**Keywords:** MOSFET, sensor, hydrogen peroxide, porous Si, Pt-nanoparticles

### СЕНСОР ПЕРЕКИСУ ВОДНЮ НА ОСНОВІ МДН-ТРАНЗИСТОРА З АКТИВНИМ ШАРОМ В ОБЛАСТІ ПІДКЛАДКИ

*О. Кутова, М. Душейко, Т. Обухова, Н. Максимчук, Т. Бородінова, В. Тимофєєв*

**Анотація.** Проведено дослідження сенсорів  $H_2O_2$  на основі МДН-транзисторів з шаром пористого кремнію та каталізатором перекису водню (наночастинками платини) на зворотній стороні підкладки в області затвору. Модифікація тильної сторони сенсора виконувалася шляхом метал-стимульованого хімічного травлення. Проведено аналіз пористої структури, вимірювання розміру наночастинок платини та їх вплив на чутливість сенсора. На основі апроксимації вольт-амперних характеристик при різних концентраціях перекису водню обчислено чутливість сенсора, що складає не менше 0,135  $\mu A/ppm$ . Розраховано енергетичну активність реакції каталітичного розпаду  $H_2O_2$  та її вплив на результати експерименту.

**Ключові слова:** МДН-транзистор, сенсор, перекис водню, пористий кремній, Pt наночастинок

### СЕНСОР ПЕРЕКИСИ ВОДОРОДА НА БАЗЕ МОП-ТРАНЗИСТОРА С АКТИВНЫМ СЛОЕМ В ОБЛАСТИ ПОДЛОЖКИ

*О. Кутова, М. Душейко, Т. Обухова, Н. Максимчук, Т. Бородинова, В. Тимофеев*

**Аннотация.** Было проведено исследования сенсоров на базе МДН-транзисторов со слоем пористого кремния и катализатором перекиси водорода (наночастицами платины) на обратной стороне подложки со стороны затвора. Изменения тыльной стороны сенсора производилась методом металл-стимулированного химического травления. Произведено анализ пористой структуры, измерено размер наночастиц платины и их влияние на чувствительность сенсора. Используя аппроксимации вольт-амперных характеристик при разных концентрациях перекиси водорода рассчитано чувствительность сенсора, которая составляет не менее 0,135  $\mu A/ppm$ . Рассчитано энергетическую активность реакции каталитического распада  $H_2O_2$  та ее влияние на результаты эксперимента.

**Ключевые слова:** МДН-транзистор, сенсор, перекис водорода, пористый кремний, Pt наночастицы



## Introduction

The application of hydrogen peroxide ( $H_2O_2$ ) in many technological processes, in particular in medicine and agriculture, is based on its oxidizing properties. The process of  $H_2O_2$  dissociation in aqueous solutions occurs freely. A rate of the dissociation can be accelerated using liquid catalysts, both anions and cations, as well as solids (coal, metals, salts and metal oxides). Also, the process of catalytic  $H_2O_2$  dissociation is effected by the pH of the media as well as by the state the active surface. In cells of plants, animals and humans body the catalytic  $H_2O_2$  dissociation occurs under influence of catalase and peroxidase enzymes, which, unlike catalysts of nonbiological origin, have extrimly high catalytic activity and specificity.

The detection and control of  $H_2O_2$  concentration are very important for pharmacy, medicine, industry. Moreover,  $H_2O_2$  is used for bleaching, for the treatment of wastewater, in the petrochemical, woodworking and paper industries, thus playing an important role in the modern industrial world. Nowadays hydrogen peroxide sensors are also widely used as a chemical sensor, since hydrogen peroxide is a product of many biological reactions, including the peroxidase and catalase mediated dissociation [1]. The level of hydrogen peroxide in food products makes it possible to assess the degree of pollution with pesticides, which in turn allows to determine the quality of these products. Another field of  $H_2O_2$  sensors application  $H_2O_2$  is an immuno-enzymatic analysis based on peroxidase.

Basic modern methods determining the concentration of hydrogen peroxide are based on chemical reactions or refractometry, which require special knowledge and equipment. However, there is a need in such sensors for household and outdoor condition, which are required to be cheap, simple in use and reliable. Usually for such purposes electrochemical reactions based on the interaction of hydrogen peroxide with metals [1-4] are used. Therefore, the development of a high-sensitive hydrogen peroxide sensors is still a challenging problem.

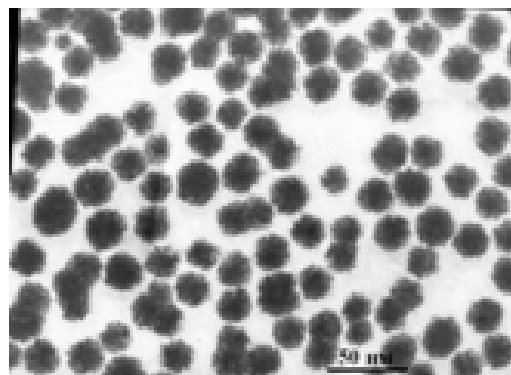
In our study a combination of a porous silicon structure and deposition of platinum nanoparticles was proposed. Such combination enhances a sensitivity of the sensor due to a significant increase of surface area of the porous layer.

## Methods

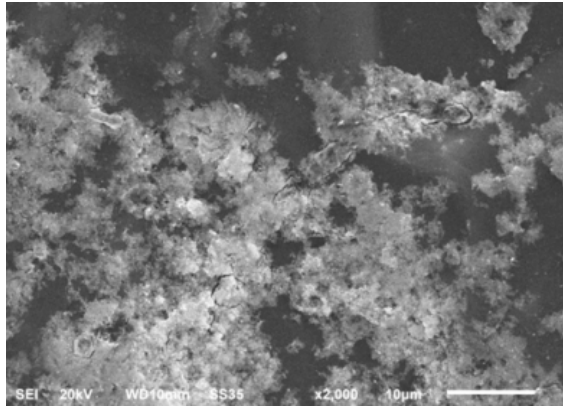
The developed sensor is based on metal-insulator-semiconductor (MIS) field-effect transistor with p-type channel. Field-effect transistor, was produced on silicon wafers doped with phosphorous (n-type), resistance  $4.5 \Omega/\square$ , with (100) orientation and thickness of  $450 \mu m$  were used.  $SiO_2$ - $CeO_2$  system was used as gate dielectric with thicknesses of  $SiO_2$  and  $CeO_2$  layers of 10 nm and 50 nm, correspondingly were used as a gate dielectric. Silicon oxide was grown on a substrate by thermal oxidation of the silicon, then a thin cerium oxide film was deposited on the surface by the method of "metallic mirror" oxidation. Aluminum was used as an ohmic contact to p-Si.

Pt nanoparticles were obtained by chemical reduction of  $PtCl_6^{2-}$  and ascorbic acid ions. In a mixture of aqueous solutions  $H_2PtCl_6 \cdot 6H_2O$  ( $C_{Pt} = 200 \text{ mg} / \text{dm}^3$ ) and  $C_6H_8O_6$  ( $5 \cdot 10^{-2} \text{ mol} / \text{dm}^3$ ) quasipheric particles with an average size of 26 nm were formed for 24 hours at  $40^\circ C$ . [5].

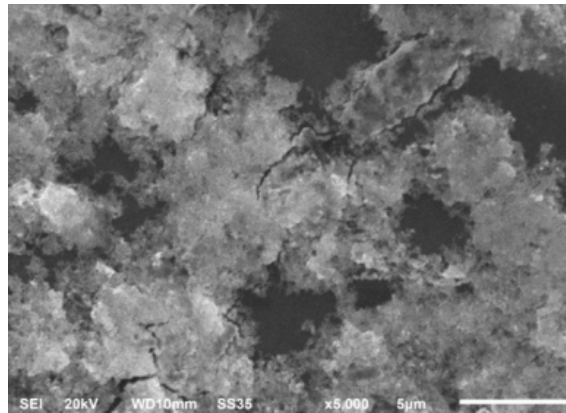
A porous silicon structure formed on the back side of the field-effect transistor with deposited on it catalyst, Pt nanoparticles, simultaneously serves as an working and sensitive area of the sensor. Such structure was formed in two stages: first, a dosed drop of a solution of nanoparticles was applied on a silicon surface. Then the metal-stimulated chemical etching of silicon was performed in a solution of 5M NF + 0,3M  $H_2O_2$  at room temperature for 90 minutes. As a result of this process, the etching of silicon under the nanoparticles Pt occurs in the (100) direction [6,7]. Images of the Pt nanoparticles on the back side of the sensor (Fig. 1) were obtained with electron microscope JEM 2000FXII, the scanning electron microscope JEOL, JEM 2100 HR and the Atomic-force microscope (SOLVER Nano), respectively.



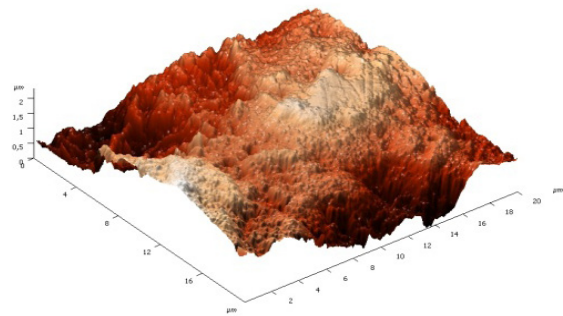
(a)



(b)



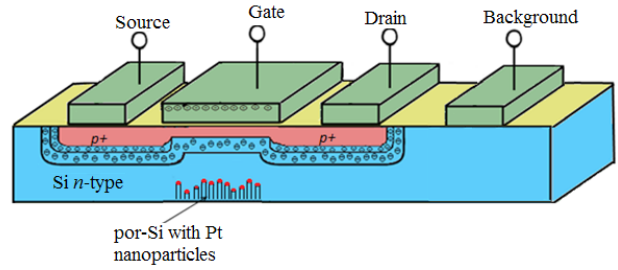
(c)



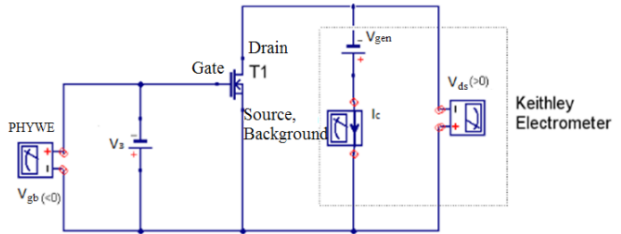
(d)

**Fig.1 SEM images of platinum nanoparticles on the back side of the field-effect transistor (a) with resolution of 2000 (b), 5000 (c) and a three-dimensional image of the sensor's functional area the with porous silicon and Pt nanoparticles (d).**

The sensor's functional area containing a layer of porous silicon and immobilized in it Pt nanoparticles is shown on Fig. 2.



(a)

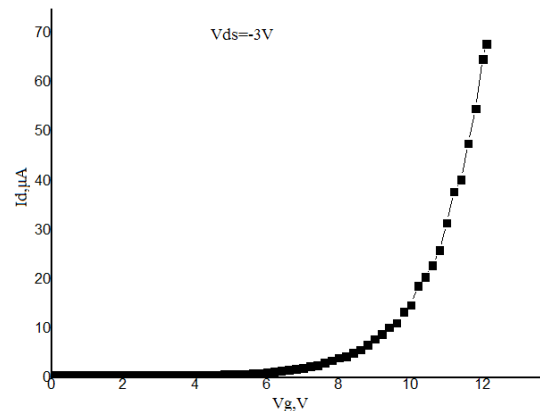


(b)

**Fig. 2 Sensor structure (a) and measurement electrical circuit (b).**

Electrical circuit for the main measurements of the sensor at different concentrations of hydrogen peroxide is shown on Fig 2.

The experiment was carried out at room temperature (18°C) in the concentration range of 25-100 ppm. Solutions of hydrogen peroxide were prepared by diluting H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 60%, produced by Grupa Azoty Zakłady Azotowe «Puławy» S.A. The reverse bias of voltage equal to 11.5 V was selected from the drain-gate characteristics of the transistor (Fig. 3). The operating drain-source voltage was in range of 3-4 V.



**Fig. 3. A drain-gate characteristic of the transistor with Pt nanoparticles.**

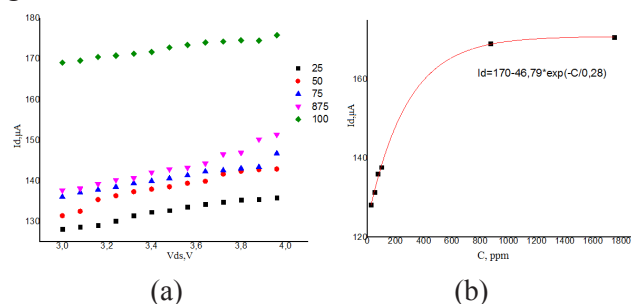


## Results and Discussion

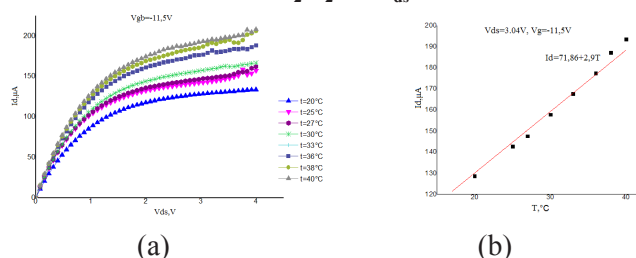
During the reaction of catalytic  $\text{H}_2\text{O}_2$  dissociation an exchange of electrons between the catalyst and hydrogen peroxide occurs in solution, which leads to extraction of charge carriers from the substrate and, consequently, to changes in the conductance of the channel. Offset of the threshold voltage or change of the drain current can serve as an indication of reaction of the sensor to change the hydrogen peroxide concentration. With an increase in the  $\text{H}_2\text{O}_2$  concentration the level of positive charges on the sensor surface rises as a result of  $\text{H}_2\text{O}_2$  dissociation. Since a p-channel MOS transistor is used, an increase in the positive charge on the its active surface leads to the extraction of electrons from the substrate, which increases the channel conductance which, in turn, leads to increase drain current.

The sensor's response to various concentrations of hydrogen peroxide was studied using I-V curves in the drain- source voltage range of 3-4V (Fig. 4a).

The dependence of the drain current on the concentration of hydrogen peroxide is approximated by a reverse exponential function (Fig. 4b), apparently due to the saturation of the sensitive region with products of the reaction at high concentrations. This problem can be overcome by increasing the gate size and sensitive area of the sensor.



**Fig.4. Output characteristics of the transistor at hydrogen peroxide concentrations of 25-100 ppm (a) and the dependence of the drain current on the concentration  $\text{H}_2\text{O}_2$  at  $V_{ds} = 3.04\text{V}$  (b).**



**Fig.5. Temperature dependence of the sensor: I-V characteristics at different temperatures (a); and temperature dependence of drain current at  $V_{ds}=3,04\text{V}$  (b).**

In addition to measuring the I-V characteristics, a study of the temperature dependence of the drain current was performed, which demonstrated the linear dependence of resistance on temperature (Fig. 5). The temperature coefficient was about  $2.9 \mu\text{A}/^\circ\text{C}$ . To take into account the influence of temperature during measurement of low  $\text{H}_2\text{O}_2$  concentrations it is reasonable to incorporate a temperature sensor to our sensor. As a result of the dissociation of 1.2 g hydrogen peroxide, only 0.3 mJ of heat is emitted, and for heating of a plate to  $1^\circ\text{C}$  0.2 J of energy is required. The obtained calculations of the energetic activity of hydrogen peroxide indicate that the reaction of catalytic dissociation of such volume of  $\text{H}_2\text{O}_2$  does not affect the temperature change of the sensor structure itself, and, thus, does not influence the results of sensor operation.

Also, to increase the sensitivity of the structure the substrate thickness should be reduced before formation of the porous silicon layer.

## Conclusions

In this study a prototype of the transistor based on MOS transistor was proposed and produced. This prototype is controlled not through a reference electrode as in standard model, but through the change of the electrical potential of a modified back side of a substrate as a result of the electrochemical reaction on the surface of the porous silicon with platinum nanoparticles. The sensitivity of the proposed sensors is at least of  $0.135 \mu\text{A}/\text{ppm}$ , and the temperature coefficient is of  $2.9 \mu\text{A}/^\circ\text{C}$ . Such characteristics create the possibility to use this sensor not only for the direct determination of hydrogen peroxide concentration, but also expands the range of its applications, for example, for the detection of other biochemical substances of interest.

## References

- [1]. Chen, S., Yuan, R., Chai, Y. et al. Electrochemical sensing of hydrogen peroxide using metal nanoparticles: a review Microchim Acta (2013) 180: 15.
- [2]. Ren, C., Song, Y., Li, Z. et al. Hydrogen peroxide sensor based on horseradish peroxidase immobilized on a silver nanoparticles/cysteamine/gold electrode Anal Bioanal Chem (2005) 381: 1179.
- [3]. Wang, Q. & Zheng, J. Electrodeposition

of silver nanoparticles on a zinc oxide film: improvement of amperometric sensing sensitivity and stability for hydrogen peroxide determination *Microchim Acta* (2010) 169: 361.

[4]. Wang, L., Zhu, H., Hou, H. et al. A novel hydrogen peroxide sensor based on Ag nanoparticles electrodeposited on chitosan-graphene oxide/cysteamine-modified gold electrode *J Solid State Electrochem* (2012) 16: 1693.

[5]. Estrela-Lopis V.R., Borodinova T.I., Yurkova I.N., Extracellular biomineralization and synthesis of nano- and microcrystals of gold and platinum in aqueous solutions of polysaccharides. In the book: "Colloid-chemical bases of nanoscience" / Ed. A.P. Shpaka, Z.R.

Ulberg. - K.: *Academperiodica*, 2005. – 238-297.

[6]. Zhipeng Huang, Xuanxiong Zhang, Manfred Reiche, Lifeng Liu, Woo Lee, Tomohiro Shimizu, Stephan Senz, and Ulrich Gösele, Extended arrays of vertically aligned sub-10 nm diameter [100] Si nanowires by metal-assisted chemical etching, *Nano Letters* – 2008, Vol. 8, No. 9, 3045-3051.

[7]. Zhipeng Huang, Nadine Geyer, Peter Werner, Johannes de Boor, Ulrich Gösele, Metal-Assisted Chemical Etching of silicon: A Review, *Adv. Mater* - 2011, 23, 285–308.

Стаття надійшла до редакції 23.11.2017 р.

PACS 07.07.Df UDC 620.3

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.116007>

## **H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> SENSOR BASED ON FET WITH ACTIVE LAYER IN SUBSTRATE AREA**

*O. Kutova<sup>1</sup>, M. Dusheiko<sup>2</sup>, T. Obukhova<sup>2</sup>, V. Tymofeev<sup>1</sup>, N. Maksimchuk<sup>2</sup>, T. Borodinova<sup>3</sup>*

<sup>1</sup>National technical university of Ukraine “Igor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute”  
03056, Kyiv, 16, Politechnichna str, Electronic engineering department,  
tel. (044) 204-99-09 E-mail: oksana03fel@gmail.com

<sup>2</sup>National technical university of Ukraine “Igor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute”  
03056, Kyiv, 16, Politechnichna str, Microelectronic department,  
tel. (044) 204-99-09 E-mail: t.y.obukhova@gmail.com

<sup>3</sup>F.D. Ovcharenko Institute of Biocolloid Chemistry NAS Ukraine  
03680, Kyiv, 42, Ac Vernadskogo av.,  
tel. (095)-554-37-70. E-mail: borodinova@ua.fm

### **Summary**

Determination and control of hydrogen peroxide concentration are very important in pharmacy, medicine, and other industries. So there is a need of simple, low-cost and reliable sensors for field and everyday use.

In the paper sensor based on the p-channel field-effect transistor of metal-insulator-semiconductor type improved with a combination of porous silicon structure with platinum nanoparticles is proposed.

Porous silicon active structure was formed on the rear side of FET. The structure was formed in two steps: first, a dosed drop of Pt nanoparticles solution was applied on a silicon surface by spin coating and after this metal-assisted chemical etching was performed.

Unlike conventional FET sensors control is providing not by comparison electrode but by changes of a potential of a modified rear side of the substrate via reaction on a porous silicon surface. During catalytic decomposition of hydrogen peroxide electrons exchange occurs in solution between catalyst and hydrogen peroxide. Increasing peroxide concentration leads to increase of positive charges quantity on working area surface. As p-channel MIS FET is used, the positive charge in the working area increase electron extraction from the substrate and consequently increase channel conductivity and drain current. The sensitivity of proposed sensors is up to 0,135  $\mu\text{A/ppm}$ , and temperature coefficient is 2,9  $\mu\text{A}/^\circ\text{C}$ .

Such results allow using this sensor not only for direct hydrogen peroxide detection but also for detection of biological substances.

**Keywords:** FET, sensor, hydrogen peroxide, porous silicon, Pt nanoparticles

## СЕНСОР ПЕРЕКИСУ ВОДНЮ НА ОСНОВІ МДН-ТРАНЗИСТОРА З АКТИВНИМ ШАРОМ В ОБЛАСТІ ПІДКЛАДКИ

*О. Ю. Кутова<sup>1</sup>, М. Г. Душейко<sup>2</sup>, Т. Ю. Обухова<sup>2</sup>, В. І. Тимофєєв<sup>2</sup>, Н. В. Максимчук<sup>2</sup>,  
Т. І. Бородінова<sup>3</sup>*

<sup>1</sup>Національний технічний університет України «Київський політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського»  
03056, Київ, вул. Політехнічна 16, кафедра електронної інженерії,  
тел. (044) 204-99- 09 E-mail: oksana03fel@gmail.com

<sup>2</sup>Національний технічний університет України  
«Київський політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського»  
03056, Київ, вул. Політехнічна 16, кафедра мікроелектроніки,  
тел. (044) 204-99- 09 E-mail: t.y.obukhova@gmail.com

<sup>3</sup>Інститут біоколоїдної хімії ім. Ф. Д. Овчаренка НАН України  
03680, Київ, просп. Акад. Вернадського 42, тел. (095)-554- 37-70.  
E-mail: borodinova@ua.fm

### Реферат

Визначення та контроль концентрації перексиду водню на сьогодні є важливими в фармакології, медицині та інших галузях. Тому необхідні прості, недорогі та надійні сенсори для загальних лабораторних досліджень та повсякденного використання.

В статті запропоновано звичайна структура сенсору на основі р-канального польового транзистора типу металл-діелектрик-напівпровідник, але модифікований шляхом комбінації пористої структури кремнію з наночастинками платини.

Активна область з пористим кремнієм була сформована на зворотній стороні МДН-транзистора. Ця процедура відбувалася в два етапи: спочатку, дозована крапля розчину наночастинок Pt наносилась на поверхню кремнію, а на наступному кроці проводили метал стимульоване хімічне травлення.

На відміну від звичайних сенсорів на основі МДН-транзисторів, відгук сенсору реєструвався не з використанням електрода порівняння, а шляхом реєстрації зміни потенціалу модифікованої тильної сторони підкладки, як результат реакції впливу пористої поверхні кремнію з наночастинками Pt. Під час каталітичного розкладу перекису водню відбувається обмін електронами в розчині між каталізатором і перекисом водню.

Збільшення концентрації перекису призводить до збільшення кількості позитивних зарядів в робочій області. Оскільки використовувався р-канальний МДН-транзистор, то позитивний заряд у робочій зоні збільшує екстракцію електронів з підкладки і, як наслідок, підвищує провідність каналу та струм стоку. Чутливість запропонованих датчиків дорівнює 0,135 мкА/ррт, а температурний коефіцієнт складає всього лише 2,9 мкА/°С. Такі результати запропонованого сенсора дозволяють використовувати його не лише для виявлення  $H_2O_2$ , але також для виявлення біологічних речовин.

**Ключові слова:** МДН-транзистор,  $H_2O_2$ , пористий кремній, Pt наночастки

# БІОСЕНСОРИ

## BIOSENSORS

УДК 543.553+577.15+543.06

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119596>

### РОЗРОБКА АМПЕРОМЕТРИЧНОЇ БІОСЕНСОРНОЇ СИСТЕМИ ДЛЯ ОДНОЧАСНОГО ВИМІРЮВАННЯ ПІРУВАТУ І ЛАКТАТУ

*Я. В. Топольнікова<sup>1</sup>, Д. В. Книжникова<sup>2</sup>, І. С. Кучеренко<sup>1</sup>, С. В. Дзядевич<sup>1,2</sup>, О. О. Солдаткін<sup>1,2</sup>*

<sup>1</sup> Інститут молекулярної біології та генетики НАН України, вул. Заболотного, 150, 03148,  
м. Київ, Україна, e-mail: [topolnyk.ya@gmail.com](mailto:topolnyk.ya@gmail.com)

<sup>2</sup> Київський національний університет імені Тараса Шевченка, вул. Володимирська, 64, 01003,  
м. Київ, Україна

### РОЗРОБКА АМПЕРОМЕТРИЧНОЇ БІОСЕНСОРНОЇ СИСТЕМИ ДЛЯ ОДНОЧАСНОГО ВИМІРЮВАННЯ ПІРУВАТУ І ЛАКТАТУ

*Я. В. Топольнікова, Д. В. Книжникова, І. С. Кучеренко, С. В. Дзядевич, О. О. Солдаткін*

**Анотація.** В роботі описано розробку біосенсорної системи, що складається з двох моно-біосенсорів на основі піруватоксидази та лактатоксидази для визначення пірувату та лактату, відповідно. Для іммобілізації ензимів у складі біоселективної мембрани було використано метод захоплення в полімер PVA-SbQ на поверхні амперометричного перетворювача. Як перетворювачі виступали платинові дискові електроди. В роботі було підібрано єдині умови виготовлення та функціонування монобіосенсорів для поєднання їх у біосенсорну систему. Було досліджено оптимальні умови іммобілізації ензимів та параметри буферного розчину для одночасної роботи біосенсорів, зокрема рН, буферну ємність та іонну силу. Перевірено перехресний вплив субстратів та кофакторів на роботу ензимів. Біосенсорна система характеризувалась гарною операційною стабільністю та відтворюваністю відгуків на піруват та лактат. Отримані аналітичні характеристики біосенсорної системи свідчать про можливість її використання для аналізу лактату та пірувату в реальних біологічних рідинах.

**Ключові слова:** лактат, піруват, біосенсорна система, іммобілізовані ензими, лактатоксидаза, піруватоксидаза



## DEVELOPMENT OF AMPEROMETRIC BIOSENSOR SYSTEM FOR SIMULTANEOUS DETERMINATION OF PYRUVATE AND LACTATE

*Ya. V. Topolnikova, D. V. Knyzhnykova, I. S. Kucherenko, S. V. Dzyadevych, O. O. Soldatkin*

**Abstract.** This article describes the development of a biosensor system consisting of two monobiosensors based on pyruvate and lactate oxidases for determination pyruvate and lactate, respectively. For the enzymes immobilization in the bioselective membrane, the method of capturing into PVA-SbQ polymer on the surface of amperometric transducer was used. Platinum disk electrodes served as the transducers. The processes of production of both monobiosensors as well as the conditions of their operation were identical, which makes their integration into a single system possible. The conditions of enzymes immobilization and parameters of buffer solution (pH, buffer capacity, ionic strength) were optimized and universalized for simultaneous operation of biosensors. The cross influence of substrates and cofactors on enzymes was examined. The biosensor system is characterized by high degree of operational stability and reproducibility to responses to pyruvate and lactate. The obtained analytical characteristics of the biosensor system testify to the possibility of efficient usage for lactate and pyruvate analyses in real biological fluids.

**Keywords:** lactate, pyruvate, biosensor system, immobilized enzymes, lactate oxidase, pyruvate oxidase

## РАЗРАБОТКА АМПЕРОМЕТРИЧЕСКОЙ БИОСЕНСОРНОЙ СИСТЕМЫ ДЛЯ ОДНОВРЕМЕННОГО ИЗМЕРЕНИЯ ПИРУВАТА И ЛАКТАТА

*Я. В. Топольникова, Д. В. Книжникова, И. С. Кучеренко, С. В. Дзядевич, А. А. Солдаткин*

**Аннотация.** В работе описана разработка биосенсорной системы, состоящая из двух монобиосенсоров на основе пируватоксидазы и лактатоксидазы для определения пирувата и лактата, соответственно. Для иммобилизации ферментов в биоселективную мембрану был использован метод захвата ферментов в полимер PVA-SbQ на поверхности амперометрического преобразователя. В качестве преобразователей выступали платиновые дисковые электроды. В работе подобраны единые условия изготовления и функционирования монобиосенсоров для объединения в единую биосенсорную систему. Были подобраны оптимальные условия иммобилизации ферментов, параметры буферного раствора, такие как pH, буферная емкость и ионная сила, для одновременной работы биосенсоров. Также было проверено перекрестное влияние субстратов и кофакторов на ферменты. Биосенсорная система характеризовалась хорошей операционной стабильностью и воспроизводимостью откликов на лактат и пируват. Полученные аналитические характеристики биосенсорной системы свидетельствуют о возможности ее успешного использования для анализа лактата и пирувата в реальных биологических образцах.

**Ключевые слова:** лактат, пируват, биосенсорная система, иммобилизованные ферменты, лактатоксидаза, пируватоксидаза

## 1. ВСТУП

Піруват – це органічна кислота, що є одною з ключових молекул у багатьох біохімічних шляхах. Піруват утворюється як кінцевий продукт гліколізу, і за аеробних умов може бути далі окиснений до ацетил-коензиму А, який вступає в цикл Кребса. Лактат утворюється з пірувату в процесі анаеробного гліколізу, та є маркером гіпоксії в клітинах, тканинах та біологічних рідинах. Так, продукція лактату зростає при станах, за яких збільшується інтенсивність анаеробного метаболізму внаслідок гіпоксії – наприклад геморагічному шоку, емболії, дихальних розладах. Тривала гіпоксія спричиняє патологічні процеси на всіх рівнях функціонування біологічного організму, а гіпоксія мозку є остаточною причиною смерті. Підвищення рівня лактату виникає також при порушенні роботи системи кліренсу лактату – розладів печінки, нирок, цукровому діабеті [1].

Концентрація пірувату у крові у нормі складає від 40-50 до 100 мкмоль/л [1], [2]. Підвищення рівня пірувату виникає як при підвищеному його утворенні при посиленні аеробних процесів, так і при недостатній утилізації в піруватдегідрогеназному комплексі. Однак надлишок пірувату швидко перетворюється в лактат при переважанні анаеробних процесів та ацетил-коензим А - при переважанні аеробних процесів [3]. Тому оцінка концентрації пірувату без врахування рівня супутніх метаболітів не є вагомим діагностичним критерієм.

Рівень лактату у крові у нормі варіює від 0,5 до 2,2 ммоль/л [1]. Під час інтенсивних фізичних навантажень цей показник може досягати 12-25 ммоль/л, однак у нормі він зникає зі швидкістю приблизно 320 ммоль/л×год. [4] переважно завдяки печінковому метаболізму та перетворенню в піруват. Однак при постійній гіперпродукції лактату в тканинах або патологіях системи утилізації, час існування гіперлактатемії набагато більший і саме це є підставою для негативного прогнозу. Тому вимірювання рівня лактату в динаміці використовується в відділеннях реанімації та інтенсивної терапії для оцінки тяжкості стану пацієнта, прогнозу ймовірності шоків станів та колапсу і смертності пацієнтів [5], [6]. Також динаміка рівня лактату в крові використовується для оцінки ефективності лікування, та спостереження адекватності

отримуваного лікування в часі. Так, стабільна концентрація лактату в крові більше 5 ммоль/л на фоні тяжкого ацидозу (рН крові менше 7,35) дає прогноз 80% смертності [6].

Підвищена концентрація пірувату спостерігається у випадках дефіциту вітаміну В<sub>1</sub>, респіраторного алкалозу (різкого зниження рівня двоокису вуглецю в крові, що супроводжується підвищенням рН), отруєння миш'яком та ртуттю, та патологіях печінки, таких як алкогольний цироз, гепатит, тощо [7]. Також показано збільшення концентрації пірувату у сироватці крові та слині хворих на рак ротової порожнини у 2-2,8 рази. Оцінка концентрації пірувату розглядається як новий метод скринінгу раку [8], [2]. Тоді як тривалий моніторинг лактату застосовується в клінічній практиці невідкладної терапії, моніторинг пірувату до сих пір не впроваджено. Це пов'язано з труднощами, пов'язаними з селективністю методу, оскільки клінічна концентрація пірувату є низькою, а концентрація електроактивних інтерферуючих речовин достатньо висока і перевищує концентрацію пірувату.

В даний час вимірювання концентрації лактату в лабораторній діагностиці переважно обмежується стандартними фотометричними та колориметричними методами. Це найдавніші та найдешевші методи, які, проте, мають низьку чутливість та селективність порівняно з ензиматичними методами. Дуже часто для визначення лактату в клініці, зокрема в відділеннях реанімації, використовують методи, що використовують ензиматичну реакцію лактатдегідрогенази, при якій утворюється НАДН. Концентрація НАДН вимірюється методами спектрофотометрії за довжини хвилі 340 нм, що корелює з концентрацією лактату у плазмі [7].

Визначення пірувату натомість у клінічній практиці переважно здійснюється разом з визначенням інших метаболітів – лактат, аланін, ацетил-коензим А. Крім того, концентрація пірувату в біологічних рідинах є відносно низькою порівняно з іншими метаболітами, тому метод повинен не лише мати високу чутливість, а й стійкість до численних інтерферуючих речовин. Тому переважаючими для визначення пірувату є ензиматичні методи, також хороші результати показує рідинна хроматографія та ЯМР.

Для застосування у клінічній діагностиці необхідна висока селективність, швидкість та простота вимірювання, а також мінімальний час на підготовку проби або відсутність такої підготовки. Цим умовам найкраще відповідають електрохімічні біосенсиори. Слід принагідно зауважити, що саме електрохімічні біосенсиори мають високу селективність та одну з найкращих чутливостей порівняно з іншими методами визначення біологічно значимих молекул.

На сьогодні відома низка біосенсорів для вимірювання лактату та пірувату, як у харчовій промисловості, так і для клінічної діагностики. Так, Monošík *et al.* розробили амперометричний біосенсор з використанням одношарових вуглецевих нанотрубок для вимірювання концентрації лактату у вині та харчових продуктах [9]. Gajović *et al.* розробили біосенсор для визначення пірувату у сироватці крові на основі рекомбінантної піруватоксидази [7]. Електроактивна поверхня мікроелектрода була збільшена шляхом електроосадження черні платини. Однак систем чи мультибіосенсорів для одночасного вимірювання концентрацій лактату та пірувату, які були б апробовані при роботі з сироваткою крові, досі не було описано.

Тому метою даної роботи була розробка амперометричної біосенсорної системи для одночасного визначення лактату та пірувату для подальшого застосування у клінічній діагностиці.

## 2. МАТЕРІАЛИ І МЕТОДИ

### Матеріали

В роботі використовували лактатоксидазу (ЛЮД) із *Pedicoccus sp.* (КФ 1.1.3.2) з активністю 35 од. акт. мг<sup>-1</sup>, лактат натрію, піруватоксидазу (ПОД) з *Aerococcus sp.* (КФ 1.2.3.3) з активністю 54 од. акт. мг<sup>-1</sup>, піруват натрію, бичачий сироватковий альбумін, фотополімер полівінілалкоголь, що містить стирилпіридинові групи (PVA-SbQ), 25% водний розчин глутарового альдегіду, Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> та HEPES виробництва Sigma–Aldrich Chimie. Використовувався тіамінпірофосфат (ТПФ) виробництва «Biofarma» (ліофілізат для приготування розчинів для ін'єкцій). Інші неорганічні сполуки, що використовувалися в роботі, були вітчизняного виробництва та мали ступінь чистоти «хч» та «чда».

Мікрочастинки силікаліту були синтезовані штучно за методикою, описаною в попередній роботі [10].

### Конструкція амперометричних перетворювачів

Платинові дискові електроди виготовлялись в нашій лабораторії за наступною технологією: шматочок платинового дроту діаметром 0,5 мм і довжиною 3 мм поміщався в звужений з одного боку скляний капіляр з зовнішнім діаметром 3,5 мм, після чого звужений кінець капіляру із платиною у середині герметизувався запаюванням в полум'ї пальника. Електричне з'єднання платини з провідником у вигляді срібного дроту забезпечувалось низько-температурним запаюванням за допомогою сплаву Вуда. Відкритий кінець електроду заповнювався епоксидною смолою, частина провідника знаходилась в середині капіляру, а частина залишалась ззовні, до нього в свою чергу припаювався мідний контакт, необхідний для з'єднання з вимірювальною установкою. Перед першим використанням, робоча частина електроду зі впаяною платиною проходила механічну обробку на наждачному папері та за допомогою алюмінієвої пасти. При необхідності, робоча поверхня платинового електрода поновлювалася за допомогою повторного шліфування.

### Методика вимірювання

Використовувалась триелектродна схема амперометричного аналізу. Робочі амперометричні перетворювачі на основі платинових дискових електродів, допоміжний платиновий електрод та Ag/AgCl електрод порівняння (хлорсрібний) підключались до потенціостату PalmSens (Palm Instruments BV, Нідерланди). 8-ми канальний пристрій (CH-8 multiplexer, Palm Instruments BV, Нідерланди), що підключався до потенціостату, дозволяв отримувати сигнали одночасно з 8 робочих електродів, проте зазвичай до нього були підключені 2-3 робочі електроди. Відстань між допоміжним платиновим електродом та усіма робочими біосенсорами в процесі вимірювання була однаковою і складала приблизно 5 мм. Виміри проводили за кімнатної температури у відкриті

тій вимірювальній комірі об'ємом 2 мл при постійному перемішуванні та при постійному потенціалі +0,6 В відносно Ag/AgCl електрода порівняння. В якості робочих буферів використовували 25 мМ НЕРЕС, рН 7,4, та 50 мМ фосфатний буфер, рН 6,5, до яких, за необхідності, додавали кофактори піруватоксидази – іони магнію, ТПФ та іони фосфорної кислоти. Усі дослідження проводились щонайменше у трьох повторностях.

#### **Методика нанесення біоселективних мембран**

Біоселективні елементи біосенсорів отримували шляхом іммобілізації ензимів і допоміжних речовин на поверхню амперометричного перетворювача. Вихідний розчин для іммобілізації лактатоксидази містив 8 % (тут і далі – масова частка) ЛОД, 4 % БСА, 10 % гліцеролу в 100 мМ фосфатному буфері, рН 6,5. Вихідний розчин для іммобілізації піруватоксидази містив 20% ПОД, 5% БСА, 10% гліцеролу в 100 мМ фосфатному буфері, рН 6,5. Гліцерол додавали, щоб стабілізувати ферменти впродовж їх іммобілізації та запобігти передчасному висиханню краплі і поліпшити адгезію мембрани до поверхні перетворювача.

Нами було використано 3 методики іммобілізації ензимів. Після кожної іммобілізації, біосенсиори відмивали в робочому буферному розчині від незв'язаних компонентів біоселективної мембрани.

#### **Іммобілізація шляхом поперечного зшивання за допомогою глутарового альдегіду**

Вихідний розчин, що містив ензими, змішували з 0,7% або 0,3% водним розчином глутарового альдегіду (зшиваючого агенту) у пропорції 1:1. Одразу після цього суміш наносили на робочі поверхні перетворювачів та висушували протягом 40 хв. на повітрі за кімнатної температури.

#### **Іммобілізація шляхом адсорбції на поверхні силікалітних частинок**

Перед проведенням адсорбції проводили модифікацію поверхні перетворювачів силіка-

літом. Для цього використовували 10 % суспензію силікаліту у дистильованій воді. Невеликий об'єм (0,165 мкл) розчину силікаліту наносили на чутливу частину електрода, після чого перетворювач нагрівали до 100°C впродовж 5 хв. у термостаті. Така температура не впливала на силікаліт та на робочі характеристики перетворювача. В результаті цього, на перетворювачах формувався шар силікаліту. Потім на чутливу область наносили розчин ензиму та очікували 15 хв. для адсорбції ензиму на силікаліті.

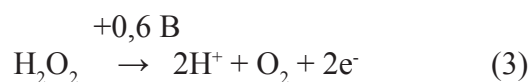
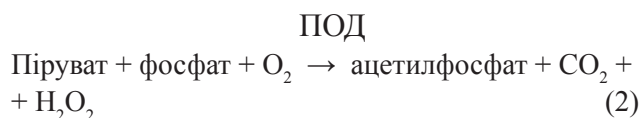
#### **Іммобілізація шляхом захоплення ензиму в фотополімері PVA-SbQ**

Вихідний розчин, що містив ензими, змішували з 13,3 % водним розчином PVA-SbQ у пропорції 1:1. Одразу після цього суміш наносили на чутливу поверхню перетворювача і опромінювали її ультрафіолетом протягом 20 хв. за допомогою УФ лампи КФ-4М для формування мембран.

### **3. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ**

#### **Принцип роботи біосенсорної системи**

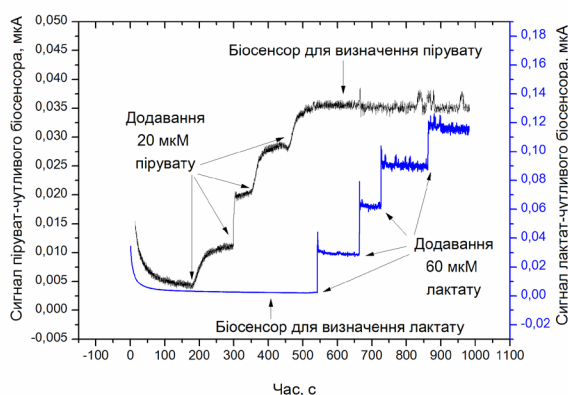
Пропонована біосенсорна система складається з двох близьких за конструкцією амперометричних біосенсорів, які відрізняються лише ензимом в складі біоселективного елементу. Біосенсор для визначення лактату містить лактатоксидазу, а біосенсор для визначення пірувату – піруватоксидазу. Принцип роботи біосенсорів базуються на наступних реакціях:



У випадку біосенсора для визначення лактату, лактатоксидаза окиснює лактат до пірувату і при цьому утворюється пероксид водню (реакція 1). При роботі біосенсора для визначення



пірувату, піруват і фосфат перетворюються на ацетилфосфат за допомогою піруватоксидази (реакція 2) і при цьому теж утворюється пероксид водню. При прикладанні позитивного потенціалу до амперометричних перетворювачів, на які нанесено відповідні ферменти, утворений пероксид водню розщеплюється згідно реакції (3) з утворенням електронів, які і реєструються за допомогою амперометричних перетворювачів та формують відгук біосенсорів. Приклад реальних відгуків біосенсорної системи наведено на Рис. 1.



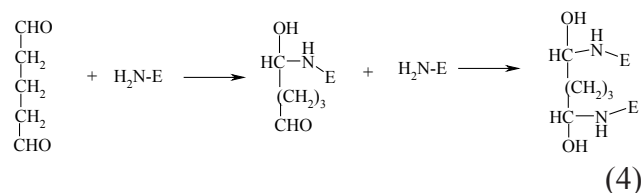
**Рис. 1. Типові відгуки біосенсорів для визначення пірувату і лактату на додавання субстратів. Вимірювання проводились у 25 мМ HEPES буфері, рН 7,4, у присутності 125 мкМ  $Mg^{2+}$ , 500 мкМ ТПФ, 20 мМ іонів фосфорної кислоти; за постійного потенціалу +0,6 В відносно Ag/AgCl електрода порівняння.**

#### *Дослідження можливості іммобілізації біоселективних елементів біосенсорів в однакових умовах*

Нами було проведено порівняння ефективності трьох різних способів іммобілізації. Оскільки лактатоксидаза більш стабільна і невибаглива до умов іммобілізації ніж піруватоксидаза, вибір оптимальних умов іммобілізації проводився для піруватоксидази, після чого було перевірено роботу лактатоксидази у вибраних умовах.

Спершу було перевірено іммобілізацію ензимів методом поперечного зшивання глутаровим альдегідом. Біфункціональний агент глутаровий альдегід містить дві альдегідні групи, які вступають в реакцію з вільними аміногрупами

білків при нейтральному рН. Для іммобілізації ензиму використовується зшивання молекул ензиму та БСА за допомогою глутарового альдегіду, з утворенням полімерної мембрани:



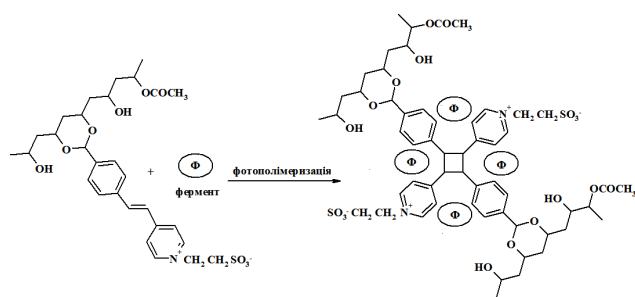
Між глутаровим альдегідом та аміногрупами білків утворюються ковалентні зв'язки, які стійкі до змін рН та температури. Тому ензим іммобілізується досить міцно, проте при цьому змінюється структура ензиму і відповідно знижується його активність. Також можливе просторове блокування активних центрів ензимів. До недоліків даного методу іммобілізації можна віднести і токсичність зшиваючого агента.

Цей метод був ефективним для іммобілізації лактатоксидази, однак при роботі з піруватоксидазою він показав низьку активність ензиму після іммобілізації.

Тому наступним був випробуваний метод іммобілізації на основі адсорбції ензиму на мікрочастинках силікаліту. Спочатку на перетворювач наносили шар силікаліту, після чого молекули ензиму адсорбувались на поверхні силікаліту. Даний метод є значно кращим для іммобілізації низько стабільних ензимів, бо при адсорбції майже не відбувається порушення тривимірної структури ензиму. Проте і міцність іммобілізації є невисокою.

Третім використаним методом іммобілізації була інкапсуляція ензиму у фотополімерній мембрані на основі PVA-SbQ. В цьому методі відбувається захоплення ензиму в сітку полімеру, яка утворюється від час фотополімеризації мономерів. PVA-SbQ – це розчинний фотополімер, який під впливом ультрафіолетового світла полімеризується та утворює сітку, в яку захоплює молекули ензиму (реакція 5). Цей метод є не агресивним і сприяє кращому збереженню нативної структури ензиму у порівнянні з ковалентним зшиванням.





(5)

Порівняння характеристик біосенсорів, отриманих трьома методами іммобілізації піруватоксидази, приведені в Табл. 1. Як видно з таблиці, метод інкапсуляції ензиму в PVA-SbQ показав високу чутливість, широкий лінійний діапазон та низький рівень шуму порівняно з іншими методами. Крім того, при іммобілізації ензиму за участю PVA-SbQ біосенсор після 2 годин безперервної роботи майже не втратив активності порівняно з біосенсорами, виготовленими за іншими методами іммобілізації. Тому для іммобілізації піруватоксидази надалі було використано метод іммобілізації за участю PVA-SbQ.

Після цього було перевірено ефективність методу іммобілізації за участю PVA-SbQ для біосенсора на основі лактатоксидази. Робочі характеристики біосенсорів суттєво не відрізнялись від біосенсорів на основі лактатоксидази, іммобілізованої глутаровим альдегідом. Однак оскільки піруватоксидаза більш чутлива до умов іммобілізації, було обрано оптимальний варіант іммобілізації для цього ензиму. Тому для іммобілізації в однакових умовах нами було обрано іммобілізацію ензимів за участю PVA-SbQ.

### *Залежність роботи біосенсорів від рН буферного розчину*

Як відомо, кожен ензим має рН-оптимум своєї роботи. Відповідно, для оптимізації роботи біосенсорної системи необхідно було підібрати такий діапазон рН робочого буфера, при якому іммобілізовані лактатоксидаза та піруватоксидаза будуть працювати з найбільшою ефективністю.

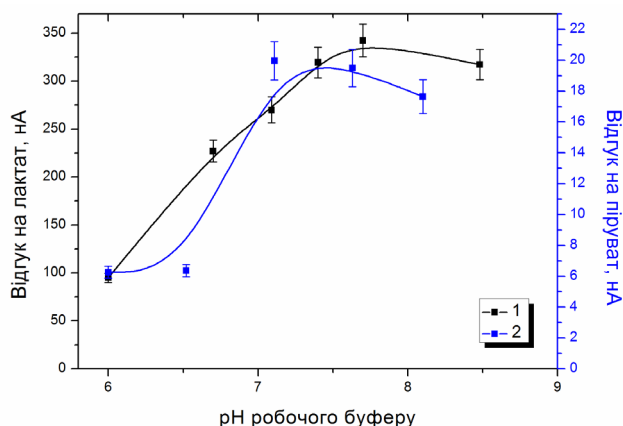
Таблиця 1

### **Порівняння характеристик біосенсорів на основі піруватоксидази, іммобілізованої за допомогою різних методів**

Аналітичні характеристики біосенсора	Метод іммобілізації			
	Зшивання ГА (0,15%)	Зшивання ГА (0,35%)	Адсорбція на силікаліті	Захоплення в PVA-SbQ
Чутливість, нА/мМ	23,6	2,9	11,5	23,7
Лінійний діапазон роботи, мМ	0,16-4	0,31-11	0,08-6,7	0,01-5
Мінімальна межа визначення, мкМ	9	170	6,0	5,1
Верхня межа динамічного діапазону роботи, мМ	11,1	17,0	8,1	6,8
Шум базової лінії, нА	0,11	0,13	0,06	0,095
Погрішність вимірювання, %	16,78	55,43	11,68	6,2
Дрейф базової лінії, мкМ/хв	0,02	0,07	0,05	0,005
Величина відгуку біосенсора після 2 годин безперервної роботи, %	48,82	70,97	83,61	90,2

Як відомо, рН-оптимум для вільних та іммобілізованих ензимів може суттєво відрізнятися у кислу або лужну сторони. Оскільки ми застосовуємо іммобілізацію у шарі полімеру, а літературні дані для використовуваних нами ензимів лактатоксидази та піруватоксидази переважно стосувались ковалентного зшивання, необхідно було перевірити чи є суттєва залежність відгуку біосенсора від зміни рН буферу, принаймні у діапазоні, який очікується для реальних зразків.

Тому нами було визначено оптимальне значення рН робочого буферу для обох ензимів у іммобілізованому стані. Для цього було проведено вимірювання величини відгуку біосенсора у розчинах із змінним рН (Рис. 2). Для цього було використано багатокомпонентний ("полімікс") буфер (50 мМ  $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ ; 50 мМ тетраборату натрію; 50 мМ тріс; 50 мМ лимонної кислоти) із різним значення рН. Піруватоксидаза була іммобілізована в полімері PVA-SbQ, лактатоксидаза – ковалентним зшиванням глутаровим альдегідом.



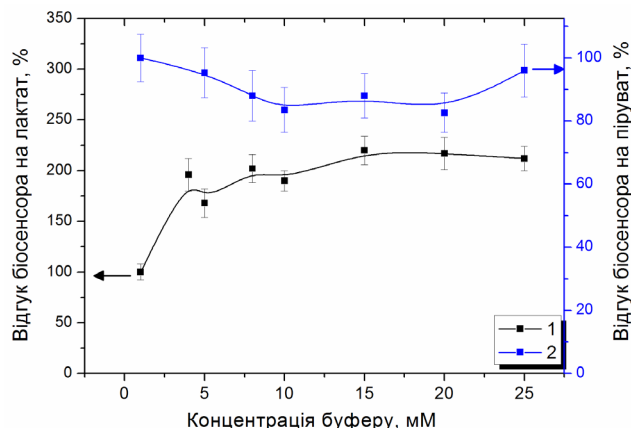
**Рис. 2.** Крива залежності відгуку монобіосенсорів для визначення лактату (1) та пірувату (2) від рН розчину. Біосенсор на основі піруватоксидази працював у 50 мМ багатокомпонентному буфері, з додаванням 125 мкМ  $\text{Mg}^{2+}$ , 500 мкМ ТПФ, та 7,5 мМ пірувату. Біосенсор для лактатоксидази – в такому ж буфері, без додавання  $\text{Mg}^{2+}$  та ТПФ, з 1 мМ лактату.

Оптимум для іммобілізованої в PVA-SbQ піруватоксидази склав від 7,1 до 8,1. Оптимальний діапазон значень рН для лактатоксидази починався від 7, досягаючи піку близько 7,7. Але оскільки біосенсорна система призначалась для вимірювання сироватки крові, було

вирішено надалі працювати з розчином рН 7,4 який відповідає фізіологічному. Таким чином оптимальні характеристики біосенсорів включають весь діапазон значення рН крові, як в фізіологічному, так і в патологічних станах, який коливається від 7,3 до 7,5.

### **Вплив буферної ємності на роботу біосенсорної системи**

Оскільки біологічним системам у важких патологічних станах властива зміна буферного балансу, а характеристики робочого розчину є одним з факторів, що можуть впливати на роботу біосенсорної системи, потрібно було знайти оптимальний діапазон буферної ємності робочого розчину, щоб її коливання не впливали на одночасну роботу кожного з біосенсорів в складі системи. Було показано (Рис. 3), що відгуки біосенсорів практично не залежать від концентрації буферного розчину при концентраціях буферу більше 4 мМ. Тому обидва біосенсиори та система, що з них складається, можуть використовуватись для вимірювання зразків з різною буферною ємністю.



**Рис. 3.** Залежність відгуку монобіосенсора на основі лактатоксидази (1) та піруватоксидази (2) від концентрації буферного розчину. Концентрації субстратів: 0,5 мМ лактату та 1 мМ пірувату. Вимірювання проводились в буфері HEPES різних концентрацій, рН 7,4, у присутності 125 мкМ  $\text{Mg}^{2+}$ , 500 мкМ ТПФ, 20 мМ іонів фосфорної кислоти за постійного потенціалу +0,6 В відносно Ag/AgCl електрода порівняння.

### Вплив іонної сили на роботу біосенсорної системи

У реальних біологічних зразках, зокрема в сироватці крові, присутня велика кількість іонів, зокрема  $K^+$ ,  $Na^+$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $Cl^-$ , інші іони органічних та неорганічних кислот та ін. Також іонний склад крові може суттєво змінюватись під час різних фізіологічних та особливо патологічних процесів. Тому нами було проведено дослідження стабільності відгуків біосенсорів в умовах різної іонної сили розчину.

Експеримент проводили додаванням до робочої комірки концентрованих розчинів NaCl різного об'єму (Рис. 4). Концентрації NaCl вибирались з врахуванням можливих варіантів розведення реальних біологічних зразків.

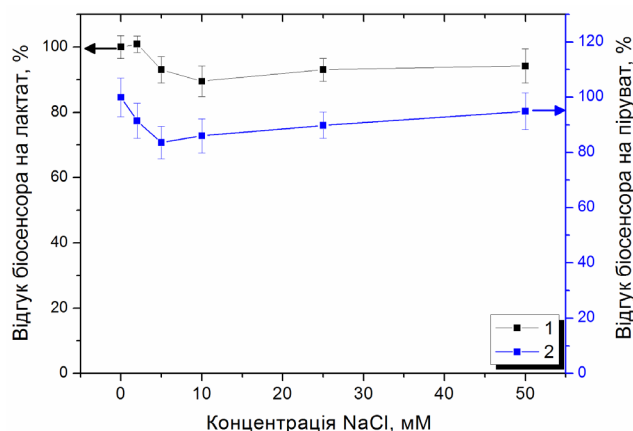


Рис. 4. Залежність величини відгуків монобіосенсорів на основі лактатоксидази (1) та піруватоксидази (2) від іонної сили розчину. Концентрація лактату становила 1 мМ, пірувату – 1 мМ. Вимірювання проводились у 25 мМ HEPES буфері, рН 7,4, у присутності 125 мкМ  $Mg^{2+}$ , 500 мкМ ТПФ, 20 мМ іонів фосфорної кислоти; за постійного потенціалу +0,6 В відносно Ag/AgCl електрода порівняння.

Значної розбіжності відгуків біосенсора при різних концентраціях NaCl не спостерігалось. Це свідчить про можливість використання даного біосенсора для аналізу біологічних рідин, що характеризуються варіабельною іонною силою.

### Перехресний вплив субстратів біосенсорів на роботу біосенсорної системи

Як відомо з літератури, піруватоксидаза не проявляє субстратної специфічності до лактату,

а лактатоксидаза – до пірувату. Тим не менш, оскільки біоселективні елементи біосенсорної системи повинні працювати одночасно в одному і тому ж середовищі та за однакових умов, нами було проаналізовано перехресний вплив субстратів монобіосенсорів на величину їх відгуків. Було показано, що на відгук біосенсора для визначення пірувату не впливає наявність лактату (2 мМ) у вимірювальній комірці. Аналогічно, наявність пірувату (2 мМ) не впливає на роботу біосенсора для визначення лактату.

Крім того, оскільки біосенсор для визначення пірувату потребує застосування кофакторів, а саме іонів фосфорної кислоти, іонів магнію та тіамініпрофосфату, було також перевірено їх вплив на монобіосенсор для визначення лактату. Для цього було отримано калібрувальні криві для визначення лактату у чистому буфері, а також у буфері з додаванням кофакторів (Рис. 5). Калібрувальні криві були однакові незалежно від наявності чи відсутності кофакторів, тому можна зробити висновок, що наявність у робочому буфері кофакторів піруватоксидази не впливає на відгук біосенсора для визначення лактату.

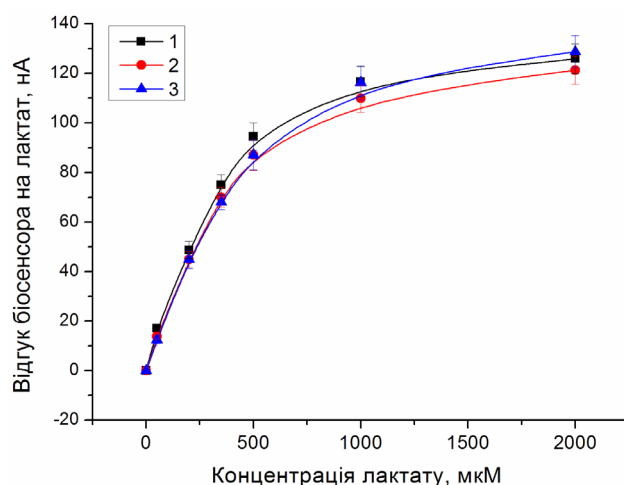


Рис. 5. Калібрувальні криві для визначення лактату біосенсора на основі лактатоксидази, отримані: (1) в 25 мМ буфері HEPES, рН 7,4; (2) в 25 мМ буфері HEPES, рН 7,4 з додаванням 20 мМ іонів фосфорної кислоти; (3) в 25 мМ буфері HEPES з додаванням 20 мМ іонів фосфорної кислоти, 125 мкМ  $Mg^{2+}$  та 500 мкМ ТПФ. Вимірювання проводились за постійного потенціалу +0,6 В відносно Ag/AgCl електрода порівняння.

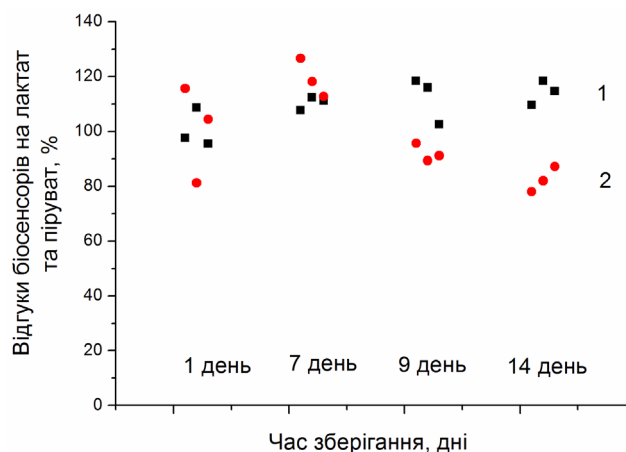
Таким чином, при поєднанні в систему для одночасної роботи, субстрати та кофактори одного монобіосенсора не впливають на роботу іншого монобіосенсора, а отже, біосенсори можуть працювати в складі системи в однакових умовах та єдиному буферному розчині.

### ***Відтворюваність та операційна стабільність відгуків біосенсорів***

Важливим показником роботи біосенсорів є відтворюваність відгуків. Тому ми отримували відгуки на субстрати протягом кількох годин безперервної роботи. Одне вимірювання відгуку займало 5 хв., проміжок між ними – 4-5 хв., за цей час біосенсори відмивали від субстратів, кілька разів змінюючи робочий буфер. Помітного падіння відгуків за 20 вимірювань не відбувалось; відносне середньоквадратичне відхилення відгуків на лактат в середньому становило 5,0 %, а на піруват – 6,2 %. Таким чином, біосенсорна система відтворювано працювала з модельними розчинами субстратів.

Також важливим показником роботи біосенсорної системи є можливість використання її протягом тривалого часу. Термін роботи біосенсора обмежується переважно терміном зберігання біоселективного елемента, оскільки фізична частина біосенсора може зберігатися практично необмежений час. Поступово іммобілізовані ензими втрачають активність, що зрештою призводить до втрати чутливості біосенсора до субстратів. Тому наступним етапом нашої роботи було визначення операційної стабільності біосенсорної системи. Протягом дня ми отримували 3 відгуки на відповідні субстрати. У перерві між вимірюваннями біосенсори зберігались в сухому стані при +4°C. Результати експериментів протягом 14 днів представлені на Рис. 6.

Було показано, що монобіосенсор для вимірювання лактату не втратив активності після 14 днів зберігання в сухому стані при +4 °C, тоді як біосенсор для вимірювання пірувату на 14 день зберігає 82,3% активності. Це свідчить про необхідність калібрування біосенсорів після зберігання протягом періоду більшого ніж два тижні, а також про гіршу стабільність піруватоксидази у порівнянні з лактатоксидазою.



**Рис. 6. Стабільність відгуків біосенсорів на основі лактатоксидази та піруватоксидази на 1 мМ лактату та пірувату відповідно протягом 14 днів. Вимірювання проводились у 25 мМ HEPES буфері, рН 7,4, за постійного потенціалу +0,6 В відносно Ag/AgCl електрода порівняння, з додаванням 125 мкМ  $Mg^{2+}$ , 500 мкМ ТПФ, 20 мМ іонів фосфорної кислоти. Умови зберігання – в сухому стані при +4 °C.**

### ***Аналітичні характеристики біосенсорної системи для визначення пірувату та лактату***

Після розробки та оптимізації роботи біосенсорної системи необхідно було визначити її основні аналітичні характеристики (Табл. 2). Мінімальна межа вимірювання лактату, яка вимірювалась як концентрація лактату, що призводить до відгуку біосенсора в три рази більшого за величину шуму базової лінії, становила 3 мкМ, мінімальна межа вимірювання пірувату – 5 мкМ. Межа вимірювання несуттєво змінювалась в залежності від конкретного біосенсора. Лінійний діапазон роботи біосенсора для визначення лактату складав від 5 мкМ до 1000 мкМ, чутливість до лактату становила 204 нА/мМ. Лінійний діапазон біосенсора для визначення пірувату складав від 10 мкМ до 5 мМ, чутливість до пірувату становила 24 нА/мМ.

В подальшому біосенсорну систему планується використовувати для клінічної діагностики концентрації лактату та пірувату в біологічних рідинах, зокрема сироватці крові. Концентрація лактату в крові 0,5 до 2,2 ммоль/л у нормальних умовах, при патологічних станах може зростати до 5-8 ммоль/л, в особливо важких станах до 10-12 ммоль/л.

Таблиця 2

**Основні аналітичні характеристики біосенсорної системи.**

Аналітична характеристика	Біосенсор для визначення пірувату	Біосенсор для визначення лактату
Мінімальна межа визначення субстрату, мкМ	5	3
Лінійний діапазон, мкМ	10 - 5000	5-1000
Відтворюваність (відносна середньоквадратична розбіжність) відгуків біосенсора, %	6,2	5,0
Час аналізу, хв.	5	5
Стабільність при зберіганні, тижні	>2	>2

Концентрація пірувату у крові у нормі складає від 40-50 до 100 мкмоль/л, при патологічних станах зростає до 200-250 мкмоль/л. Тому необхідно було підібрати ту концентрацію розведення біоматеріалу (сироватки крові), при якій можна оцінити концентрацію як лактату, так і пірувату за умов одночасного вимірювання. Оскільки концентрації лактату та пірувату в сироватці крові суттєво відрізняються, нами було вибрано розведення 1:10. При цьому розведенні враховується весь діапазон можливих значень пірувату, та діапазон значень лактату від 0,5 до 10 ммоль/л. При перевищенні концентрації лактату у пробі 10 ммоль/л, слід провести повторне вимірювання з більшим розведенням.

**4. ВИСНОВКИ**

В роботі розроблено амперометричну біосенсорну систему для одночасного вимірювання концентрацій лактату та пірувату в біологічних рідинах. Для поєднання монобіосенсорів у систему було оптимізовано та уніфіковано методи виготовлення біосенсорів та параметри робочого розчину. Було проведено порівняння ефективності різних способів іммобілізації піруватоксидази. Показано, що зміна параметрів робочого розчину (таких як іонна сила діа-

пазоні 1-50 мМ NaCl та концентрація робочого буферу в діапазоні 2-25 мМ) не впливає на роботу біосенсорної системи. Виявлено, що рН оптимум робочого розчину для роботи іммобілізованих ензимів лежить у діапазоні від 7 до 8 та підходить для вимірювання біологічних зразків. Продемонстровано відсутність перехресного впливу субстратів монобіосенсорів, а також впливу концентрації кофакторів та компонентів буферного розчину.

Біосенсорна система відзначалась високою відтворюваністю відгуків та операційною стабільністю. Лінійний діапазон визначення лактату становив від 5 мкМ до 1000 мкМ, визначення пірувату - від 10 мкМ до 5 мМ, з мінімальною межею визначення лактату – 3 мкМ, пірувату – 5 мкМ. Пропоновану біосенсорну систему в подальшому планується використовувати для вимірювання лактату та пірувату у реальних зразках сироватки крові та адаптувати для використання у клінічній діагностиці.

**ПОДЯКА**

Робота виконана за фінансової підтримки НАН України в рамках комплексної науково-технічної програми «Сенсорні прилади для медико-екологічних та промислово-технологічних потреб: метрологічне забезпечення та дослідна експлуатація».



## СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

- [1]. C. S. Pundir, V. Narwal, and B. Batra. Determination of lactic acid with special emphasis on biosensing methods: A review// *Biosens. Bioelectron.*, 86, pp. 777–790 (2016)
- [2]. M. Bhat, K. V. V. Prasad, D. Trivedi, B. Rajeev, and H. Battur. Pyruvic acid levels in serum and saliva: A new course for oral cancer screening?// *J. Oral Maxillofac. Pathol.*, 20(1), p. 102 (2016)
- [3]. M. Fisher. *Lehninger Principles of Biochemistry*, 3rd edition; By David L. Nelson and Michael M. Cox // *Chem. Educ.*, 6(1), pp. 69–70 (2001)
- [4]. B. Batra, V. Narwal, and C. S. Pundir. An amperometric lactate biosensor based on lactate dehydrogenase immobilized onto graphene oxide nanoparticles-modified pencil graphite electrode// *Eng. Life Sci.*, 16(8), pp. 786–794 (2016)
- [5]. O. Kruse, N. Grunnet, and C. Barfod. Blood lactate as a predictor for in-hospital mortality in patients admitted acutely to hospital: a systematic review// *Scand. J. Trauma. Resusc. Emerg. Med.*, 19(1), p. 74 (2011)
- [6]. Z. Zhang and X. Xu. Lactate Clearance Is a Useful Biomarker for the Prediction of All-Cause Mortality in Critically Ill Patients// *Crit. Care Med.*, 42(9), pp. 2118–2125 (2014)
- [7]. N. Gajovic, G. Binyamin, A. Warsinke, F. W. Scheller, and A. Heller. Operation of a Miniature Redox Hydrogel-Based Pyruvate Sensor in Undiluted Deoxygenated Calf Serum// *Anal. Chem.*, 72(13), pp. 2963–2968 (2000)
- [8]. A. Bhat, M. Bhat, K. Prasad, D. Trivedi, and S. Acharya. Estimation of Pyruvic acid in serum and saliva among healthy and potentially malignant disorder subjects - a stepping stone for cancer screening?// *J. Clin. Exp. Dent.*, pp. e462–e465 (2015)
- [9]. R. Monošík, M. Stred'anský, G. Greif, and E. Šturdík. A rapid method for determination of l-lactic acid in real samples by amperometric biosensor utilizing nanocomposite// *Food Control*, 23(1), pp. 238–244 (2012)
- [10]. I. S. Kucherenko et al. Elaboration of Urease Adsorption on Silicalite for Biosensor Creation// *Electroanalysis*, 24(6), pp. 1380–1385 (2012)

Стаття надійшла до редакції 11.10.2017 р.

UDC 543.553+577.15+543.06

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119596>

## DEVELOPMENT OF AMPEROMETRIC BIOSENSOR SYSTEM FOR SIMULTANEOUS DETERMINATION OF PYRUVATE AND LACTATE

*Ya. V. Topolnikova<sup>1</sup>, D. V. Knyzhnykova<sup>2</sup>, I. S. Kucherenko<sup>1</sup>, S. V. Dzyadevych<sup>1,2</sup>, O. O. Soldatkin<sup>1,2</sup>*

<sup>1</sup> Institute of Molecular Biology and Genetics, National Academy of Sciences of Ukraine,  
Zabolotnogo Street 150, 03148, Kyiv, Ukraine, *e-mail*: [topolnyk.ya@gmail.com](mailto:topolnyk.ya@gmail.com)

<sup>2</sup> Taras Shevchenko National University of Kyiv, Volodymyrska Street 64, 01003, Kyiv, Ukraine

### Summary

Measurement of the lactate and pyruvate levels is of great importance in clinical practice. In particular, it can be used for diagnostics of lactic acidosis during, respiratory alkalosis, and other illnesses. The biosensors are promising devices for the determination of lactate and pyruvate concentration.

**Aim.** The development of a biosensor system for simultaneous analysis of lactate and pyruvate; selection of optimal conditions for integration of monobiosensors in a single measuring system.

**Methods.** An amperometric method of analysis was used. Amperometric transducer based on platinum disk electrode, auxiliary platinum electrode and Ag/AgCl reference electrode were connected to PalmSens potentiostat (the Netherlands) by three-electrode measuring circuit. Immobilization of lactate oxidase and pyruvate oxidase on the surface of amperometric transducer was carried out in the PVA-SbQ polymer network.

**Results.** The biosensor system was characterized by high reproducibility and good operational stability at storage over 14 days. There was no significant effect of changes in ionic strength and buffer capacity of buffer solution on biosensor work. The pH optimum of the working solution for immobilized enzymes was found to range from 7 to 8, which is suitable for measurement in biological samples. The linear range of detection of lactate is 5  $\mu\text{M}$  - 1000  $\mu\text{M}$ , of pyruvate 10  $\mu\text{M}$  - 5 mM, minimum detection limit of lactate - 3  $\mu\text{M}$ , pyruvate - 5  $\mu\text{M}$ .

**Conclusions.** A biosensor system for the simultaneous determination of lactate and pyruvate concentrations was developed. It can be further used for the substrates detection in real biological fluids.

**Keywords:** lactate, pyruvate, biosensor system, immobilized enzymes, lactate oxidase, pyruvate oxidase

УДК 543.553+577.15+543.06

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119596>

## РОЗРОБКА АМПЕРОМЕТРИЧНОЇ БІОСЕНСОРНОЇ СИСТЕМИ ДЛЯ ОДНОЧАСНОГО ВИМІРЮВАННЯ ПІРУВАТУ І ЛАКТАТУ

*Я. В. Топольнікова<sup>1</sup>, Д. В. Книжникова<sup>2</sup>, І. С. Кучеренко<sup>1</sup>, С. В. Дзядевич<sup>1,2</sup>, О. О. Солдаткін<sup>1,2</sup>*

<sup>1</sup> Інститут молекулярної біології та генетики НАН України, вул. Заболотного, 150, 03148,  
м. Київ, Україна, *e-mail*: [topolnyk.ua@gmail.com](mailto:topolnyk.ua@gmail.com)

<sup>2</sup> Київський національний університет імені Тараса Шевченка, вул. Володимирська, 64, 01003,  
м. Київ, Україна

### Реферат

Вимірювання рівня лактату та пірувату є важливим у клінічній практиці, зокрема для діагностики лактатацидозу при невідкладних станах та респіраторного алкалозу. На сьогодні існує багато методик визначення концентрації лактату та пірувату, однак найбільшу точність забезпечують біосенсорні технології, які є високоселективними, не потребують попередньої пробопідготовки, а також працюють в режимі реального часу.

**Метою** даної роботи була розробка біосенсорної системи для одночасного вимірювання лактату та пірувату, підбір оптимальних умов для поєднання монобіосенсорів у біосенсорну систему для одночасного вимірювання лактату та пірувату.

**Методи дослідження.** В роботі використовували амперометричний метод аналізу. Амперометричні перетворювачі на основі платинових дискових електродів, допоміжний платиновий електрод та Ag/AgCl електрод порівняння за триелектродною схемою вимірювання під'єднувались до потенціостату PalmSens (Нідерланди). Імобілізація лактатоксидази та піруватоксидази на поверхні амперометричного перетворювача здійснювалась за допомогою іммобілізації у сітці полімеру PVA-SbQ.

**Результати дослідження.** Біосенсорна система характеризувалась високою відтворюваністю та доброю операційною стабільністю при зберіганні протягом 14 днів. Було показано відсутність суттєвого впливу на роботу біосенсора зміни таких параметрів буферного розчину як іонна сила та буферна ємність. Виявлено, що рН оптимум робочого буфера для іммобілізованих ензимів лежить у діапазоні від 7 до 8 та підходить для вимірювання біологічних зразків. Лінійний діапазон визначення лактату становить від 5 мкМ до 1000 мкМ, визначення пірувату – від 10 мкМ до 5 мМ, з мінімальною межею визначення лактату – 3 мкМ, пірувату – 5 мкМ.

**Узагальнення та висновки.** Розроблено біосенсорну систему для одночасного визначення концентрацій лактату і пірувату, яку можна в подальшому використовувати вимірювання субстратів в реальних біологічних рідинах.

**Ключові слова:** лактат, піруват, біосенсорна система, іммобілізовані ферменти, лактатоксидаза, піруватоксидаза

# МАТЕРІАЛИ ДЛЯ СЕНСОРІВ

---

## SENSOR MATERIALS

---

---

PACS 72.20.Jv, 42.50.Md

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119599>

### DEFORMATION MODULATION OF ELECTRONIC STATES IN LAYERED CRYSTALS

*Y. M. Stakhira*

Ivan Franko National University of Lviv,  
Faculty of Electronics and Computer Technologies,  
Dragomanov Str, 50, 79005, Lviv, Ukraine  
[stakhira@electronics.lnu.edu.ua](mailto:stakhira@electronics.lnu.edu.ua)

### DEFORMATION MODULATION OF ELECTRONIC STATES IN LAYERED CRYSTALS

*Y. M. Stakhira*

**Abstract.** The paper analyzes the changes in electronic states of a layered crystal caused by shear deformation of layers under action of the force consisting of both constant and harmonic components. It is shown that such deformation can change the component of lattice spacing by the magnitude of one layer thickness. In the frame of adiabatic approximation of the perturbation theory it is calculated the electronic states, whose degeneracy is removed by deformation perturbation, as well as the time moments of realization of degeneracy removal.

**Keywords:** layered crystals, shear deformation, modulation of electronic states

### ДЕФОРМАЦІЙНЕ МОДУЛЮВАННЯ ЕЛЕКТРОННИХ СТАНІВ У ШАРУВАТИХ КРИСТАЛАХ

*Й. М. Стахіра*

**Анотація.** Аналізуються зміни структури електронних станів шаруватого кристала, зумовлені деформацією зсуву шарів, яка здійснюється сумою сталої і гармонічної складових сили. Показано, що така деформація кристала може змінювати складову періоду ґратки на товщину

шару. В адиабатичному наближенні теорії збурень встановлені енергетичні стани, виродження яких знімається деформаційним збуренням, і моменти часу його реалізації.

**Ключові слова:** шаруваті кристали, деформація зсуву, модуляція електронних станів

## ДЕФОРМАЦИОННОЕ МОДУЛИРОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННЫХ СОСТОЯНИЙ В СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛАХ

*И. М. Стахира*

**Аннотация.** Анализируются изменения структуры электронных состояний слоистого кристалла, обусловленные деформацией сдвига слоев, которая совершается сумой постоянной и гармонической составляющих силы. Показано, что такая деформация кристалла может изменять составляющую периода решетки на толщину слоя. В адиабатическом приближении теории возмущений установлены энергетические состояния, вырождения которых снимается деформационным возмущением, и моменты времени его реализации.

**Ключевые слова:** слоистые кристаллы, деформация сдвига, модуляция электронных состояний

The presence of layers in the crystal structure of layered of crystals as their structural elements causes certain features of electronic properties of these materials. They are clearly displayed in the electron transfer phenomena and the structure of interband and phonon absorption spectra. The role of layers, as structural elements bringing forth the adequate spatial dependence of a potential, in forming the peculiarities of electronic properties depends on the structure of the layers and interaction between them. A separate layer in these crystals can have complex multilevel structure which is formed by the intense interatomic interaction [1, 2] which leads to a certain isolation of the layer. This property is manifested in the residual interaction between the adjacent layers and conservation of their structure in a wide range of external influences. It is clearly displayed during the actions of external deformation forces on the layered crystals [3-6]. The characteristic changes in the set of electronic states of layered crystals, arising from deformation of these materials, are resulted from the changes in the interaction between the layers due to approach and relative shift of the layers. This work is devoted to analysis of the changes, caused by deformation, in the structure of electronic layers and their dynamics which are realized in the form of relative shift of the adjacent layers. It is a continuation of papers [7, 8] where a mechanism has been proposed for the formation of spectra of the photoconductivity

component which is proportional to the product of light intensity and mechanical stress.

Unlike the deformation of common solids, the deformation of a layered crystal can be realized by significant approaching and relative shear the layers without essential changes in their structure. Due to such deformation the lattice constant and interaction between the adjacent layers undergo changes what results in adequate changes in the structure of electronic states. For estimation of these changes we consider the structural deformation for the case of a simplified model of layered crystal whose lattice parameter in the  $xy$  plane of the layer is equal to  $d_x$  i  $d_y$ , and in the direction  $z$  normal to the layer plane –  $d_z^0$  which coincides with the thickness of the layer. The crystal is exposed to the deformation force which is a sum of the constant  $F_c$  and variable harmonic  $F_s \cdot \sin \Omega t$  components and which leads to a relative displacement between the adjacent layers by the appropriate distance  $l = l_c + l_s \cdot \sin \Omega t$  without substantial changes in the structure of layers and distance between them. Deformation of the crystal by this force does not change the periodicity of the lattice in the  $xy$  plane but leads to changing the lattice period in the direction normal to its planes.

Within the model under consideration the lattice constant in the direction normal to the layer plane is determined by the number  $n$  of shifted



layers per total distance  $n \cdot l$  which is equal to the least number of period  $d_{xy}$ . ( $d_{xy}$  is the lattice constant in the layer plane where the shift occurs). Accordingly, the number  $n$  is determined by the equality  $N \cdot d_{xy} = n \cdot l$ , where  $N$  is the smallest integer for which  $n$  is an integer at given values of  $l$  and  $d_{xy}$ . In the case of multiplicity of the period  $d_{xy}$  to the shift value, which is reached for the shifts  $l \leq (d_{xy} / 2)$ , it is realized the small values of  $n$  and correspondingly the short periods  $d_z = n \cdot d_z^0$  of a deformed crystal.

Due to conservation of the layer structure during the process of shear deformation the lattice period  $d_z$  can be changed only discretely by the minimum thickness of one layer  $d_z^0$ . This fact gives rise to complex non-harmonic dependence of period  $d_z$  on the shift which is changing continuously.

Dependence of the lattice parameter  $d_z$  of the deformed crystal on the shift depends substantially on the ratio of their quantities to the period  $d_{xy}$ . The main requirement of this relationship - the period  $d_{xy}$  should be multiple to the shift  $l$ . For a given shift direction in the layer plane the effective displacements are selected discrete values of shifts which results in the corresponding changes of the period  $d_z$  of a deformed crystal.

The value of period  $d_z$  of the crystal deformed by a shift can be changed to integer  $p$  using an additional shift. Changing the period  $d_z$  by  $p$  units of layer thicknesses is achieved by the increments

$$\Delta l_p^+ = -\frac{p \cdot l_c}{n + p}, \quad (1)$$

$$\Delta l_p^- = \frac{p \cdot l_c}{n - p}, \quad (2)$$

which gives rise to the increase of period (1) or its decrease (2).

This property leads to the change in number  $n$  and period  $d_z$  of a deformed crystal over the time by harmonic component of the deforming force that creates the required increments of shifts.

Time changes of the period  $d_z$  of deformation perturbation,  $d_z = n \cdot d_z^0$ , which directly coincide with the time dependence of the corresponding multiplicity  $n$ , are caused by the harmonic

component of shift. Relatively to the time start,  $\Omega \cdot t_0 = 0$ , the value of a given fixed displacement  $l_c$ , to which the multiplicity  $n$  corresponds, is changed by the harmonic component  $l_s \cdot \sin \Omega t$  of the shift to the extreme values  $l_c \pm l_s$ . During the process of increasing the harmonic component of shift, it is realized such its values which are equal to the increment of shift  $\Delta l_p^-$  what decreases the multiplicity of  $n$  by  $p$  units. Accordingly, a decrease of the harmonic shift with time is accompanied by its values equal to the increment  $\Delta l_p^+$  what increases the multiplicity by  $p$ .

Deformation of a layered crystal by the force, whose harmonic component has the period much longer than the time of elasticity relaxation of a crystal, results in creating the shifts between the layers which are harmonic functions of time being in-phase to the deformed force. If at the initial time  $t = 0$  the shift between layers created by the constant component of force is equal to  $l_c$ , its increase, caused by growth of the force harmonic component, occurs within the harmonic phase range  $0 - \pi$ , whereas within the range  $\pi - 2\pi$  a decrease takes place. The time moments, at which the change of period  $d_z$ , is realized, are determined by the following equations

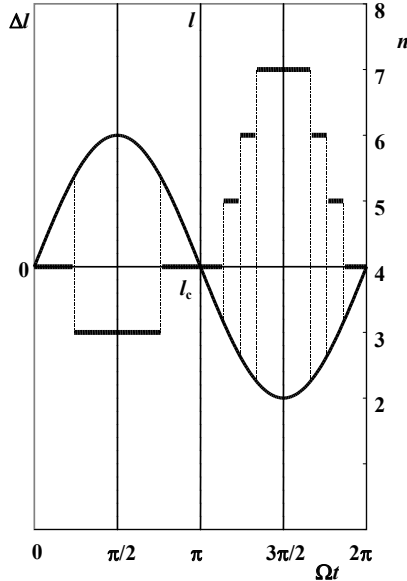
$$-\frac{p \cdot l_c}{n - p} = l_s \cdot \sin \varphi_p^-, \quad (3)$$

$$\frac{p \cdot l_c}{n + p} = l_s \cdot \sin \varphi_p^+. \quad (4)$$

Variation of the deformation perturbation period, which is performed by means of sudden increments of its value by integer number of thickness, is realized only in the time moments when the shift takes the values with respect to which the period  $d_{xy}$  is multiple of their magnitude. Figure 1 shows the time changes of the deformation perturbation period for the specific case of shifts:  $l_c = 0.25$ ,  $l_s = 0.125$ ,  $d_{xy} = 1$ .

Discrete time change of the period of the deformation perturbations  $d_z = n \cdot d_z^0$  this is caused by continuous in time the harmonic shift of layers, gives rise to certain time intervals within the period of harmonics, in which the period  $d_z$  remains constant over the time. The value of

period  $d_z$ , which is caused by the shift  $l_c$  remains unchanged in the time intervals where the value of harmonic shift is insufficient to change the multiplicity by unity.



**Fig.1. Schematic depiction of time dependence of the deformed crystal period.**

In relation to the phase origin,  $\varphi = 0$ , it refers the intervals of phase  $0 - \varphi_1$ ,  $\pi - \varphi_1$ ,  $\pi - \varphi_2$ ,  $2\pi - \varphi_2$ , for which

$$\varphi_1 = \arcsin\left(\frac{l_c}{l_s} \cdot \frac{1}{n-1}\right), \quad (5)$$

$$\varphi_2 = \arcsin\left(\frac{l_c}{l_s} \cdot \frac{1}{n+1}\right). \quad (6)$$

Thus, the time dependence of the multiplicity period  $d_{xy}$  to the value of total shift  $l$ , given at the initial fixed time, is realized by an additional shift whose magnitude is limited by the amplitude of the harmonic component shift. As a result of harmonic dependence of the total shift on time it is realized the time intervals during which the multiplicity  $n$  varies in opposite directions. At that the change of multiplicity is always opposite to the change of harmonic shift.

Deformation of a layered crystal leads to some changes in the crystal structure, due to which the appropriate changes of coordinate crystal dependence of the crystal field potential is realized. In the case of deformation, which results in a rela-

tive shift of the adjacent layers, there takes place a displacement by relatively large distances of the macroscopic fragments of crystal structure what can lead to significant changes in the electronic states. Such deformation of a layered crystal is usually achieved by small external forces and can be considered as a cause for appearance of the deformation perturbation of the potential.

Deformation potential perturbation is formed by the relative shift between the layers and significant changes in the interaction between them. The shift between the layers leads to changes of the distances between the identical structural elements of the adjacent layers and thus to change of the interaction between them and its dependence on the structure of the layer. The changes by relative shift of the weak interaction between the layers in the condition of conservation of their structure, which leave the deformed crystal in a layered state, gives rise to changes of the potential which are considered as a perturbation, leading to potential changes being considered as a perturbation. If a deforming force has low frequency harmonic component, which provides a quasi-stationary regime of the process, the period of such perturbation can depend on the shift between the adjacent layers and be of a complex discrete function of time.

The relative shift between the adjacent layers occurs simultaneously with the harmonic phase and changes of the perturbation period are realized only at the discrete values of the shift which arise in the corresponding time moments during the period of the harmonic. This time-dependent perturbation allows one to consider its impact on the electronic states in the adiabatic approximation of the perturbation theory. In the frame of this approximation the harmonic component of the perturbation is considered as slow one against which the slow (compared with the harmonic period) time intervals of changing the perturbation periodicity are fast components of the time dependence of the perturbation.

The deformation of a crystal by the total harmonic force leads to a shift of the layers which is realized in phase with the phase of harmonic component of the force. Synphasing to this harmonic of the time dependence of deformation perturbation period disappears due to the complex non-linear dependence of perturbation on the shift

magnitude. Changing the perturbation period by means of sudden increments of its value is realized only in the time moments at which the shifts acquire the magnitudes with respect to which the shift period  $d_{xy}$  is multiple to their magnitude.

In particular, the perturbation period created by constant component of the force  $d_{zc} = \frac{d_{xy}}{l_c} \cdot d_z^0 = n_c \cdot d_z^0$  decreases by the harmonic component due to increasing the total shift in the time intervals corresponding to the change of phase from  $\Omega \cdot t_0 = 0$  to  $\Omega \cdot t_1 = \pi$  and increases within the time intervals that correspond to the difference in the phase of harmonics from  $\pi$  to  $2\pi$ . As regards to the time origin  $t_0 = 0$ , at which the shift is equal to  $l_c$ , changing the period of deformation perturbation occurs in the phase opposite to that of harmonic.

Thus, the shear deformation of layers gives rise to forming a set of short time Bragg's planes which coincide with the planes of layers, and their energy location and time of origin are determined by the value  $q = \frac{2\pi}{d_z}$ . As a consequence of

the Bloch's wave diffraction on these planes there occur in the corresponding time moments the discontinuities in the energy dependence of electronic states  $E(\mathbf{k})$  for all wave vectors  $\mathbf{k}$ , whose  $k_z$  component is  $q = \frac{2\pi}{d_z}$ . Commensurability  $q$  and  $k_z$

components of wave vectors of the Brillouin zone allows realization of such gaps in the energy  $E(\mathbf{k})$  in the whole range of energies of the conduction band. For a given, fixed in time, period of perturbation  $d_z$ , the discontinuities in energy dependences occur simultaneously at all energies, when the wave vectors  $\mathbf{k}$  have  $k_z$  component satisfying

the condition  $k_z = \frac{2\pi}{d_z} \cdot m$  ( $m = 1, 2, 3 \dots$ ). As a

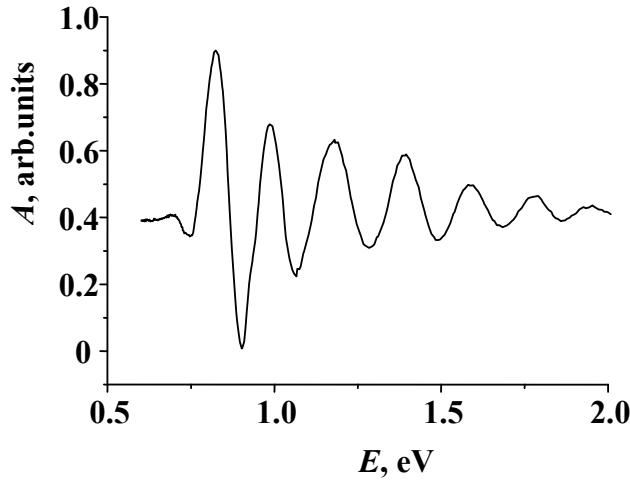
result of the gaps in the energy dependences on the wave vector,  $E(\mathbf{k})$ , in the vicinity of these energies the density of states changes dramatically leading to the corresponding changes in the electronic properties of the crystal. The energy bands, which appear due to the Bragg's diffraction, are forming in the time moments that correspond in a one-to-one manner to the values of  $q$  and can be identified by its magnitude.

The processes of removing the degeneracy of energies  $E(\mathbf{k})$  by deformation perturbation give rise to appropriate changes in the structure of electron states of a deformed crystal. Due to changes in the coordinate dependence of potential and its symmetry at the expense of layer shift the degeneracy is removed for the energies which depend on wave vectors and have the  $k_z$  component equal to the perturbation period  $q_i$ . Removing degeneracy of the energy states leads to the gaps in the energy dependence on wave vector for those vectors that have  $k_z$  component equal to  $q_i$ , and appropriate changes of electronic properties. Dynamics of the degeneracy removal and its impact on the structure of electronic states entirely coincides with the results of Bragg's diffraction of the Bloch's waves.

The shear deformation of layers maintains a layered structure and basic physical parameters of the crystal except for changing the component of lattice period in the direction perpendicular to the plane of layers which occurs discretely by the thickness of single layer. This model allows us to compare the changes in the structure of electron states that occur in the crystals, whose  $d_z$  components of the lattice constant differ by integer number. Under condition of constancy of the deformed crystal volume such deformation leads to the multiple changes in the volume of unit cells of the reciprocal lattice and the corresponding changes in the number of allowable values of wave vectors. Each fixed period of a deformed crystal corresponds to the exclusive spatial distribution of structural units and the appropriate interaction between them, depending on the structure of the layers. Among the different kinds of changes in the structure of electronic states induced by layer shift the gap of the energy functional dependence on wave vector and time of its realization remains the same for the considered model of a deformed crystal.

Structural changes in the energy of electronic states due to layer shift by controlled deforming forces can be experimentally established by observing the time dependence for one period of harmonic absorption coefficient of the monochromatic light, which acts as a monitor. In particular, this opens an opportunity to estimate the spectral composition of illuminating light on the basis of the time dependence of its absorption measured

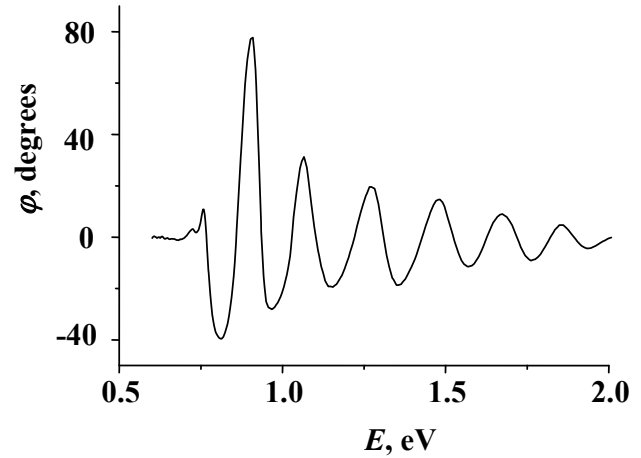
by a radio-technical method without using the dispersion elements. In [7, 8] such changes have been estimated upon the time spectral dependence of the piezophotocurrent phase shift with respect to the phase of a deforming force.



**Fig.2. Spectrum of piezophotocurrent of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  crystal.**

From the view point of practical application of the presented results of special attention is a spectral distribution of time moments of removing the degeneracy of energy of electronic states. With the aim of estimation of practical use of this effect it has been carried out experimental investigation of the dependence of the time moments of removing the degeneracy on the energy of electronic states. The experiments have been performed on crystals of the  $\text{In}_4\text{Se}_3$  semiconductor compound.  $\text{In}_4\text{Se}_3$  crystal belongs to the rhombic system in which weakly interacting layers have a complex structure. Unit cell of the crystal contains 28 atoms between which there are bonds of different types.  $\text{In}_4\text{Se}_3$  single crystals were grown by the Czochralski method, and the samples under study presented natural cleaved plates. Deformation of the samples was carried out by the force which had a low frequency harmonic component. The force was applied perpendicularly to the plane of the layers at a small angle to their surface. We measured the spectra of a piezophotocurrent component of conductivity which is proportional to the product of light intensity and mechanical stress. The spectrum of this component in the range of photon energy which corresponds to the interband transitions in the  $\text{In}_4\text{Se}_3$  compound is

shown in Fig. 2. Fig. 3 presents the spectral dependence of the phase shift of the piezophotocurrent component relatively to the phase of deforming force measured by a phase meter. It should be noted that there are not physical causes for occurrence of the phase differences in the process under consideration. An imaginary phase shift results from the sudden change in the moments of removing the degeneracy of the form of harmonics which occurs at the corresponding time moments.



**Fig.3. Spectrum of the phase shift of the piezophotocurrent component relatively to the phase of deforming force of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  crystal.**

High sensitivity of the phase values to the energy of electronic states,  $d\varphi/dE(k)$ , allows us to conclude that the deformation changes in the structure of electronic states of layered crystals, which are caused by a shift of the layers, can be effectively used for development of electronic analyzers of spectral composition of light and systems of object recognition.

Summing up the obtained results we come to conclusion that shear deformation by means of the deforming force with a harmonic component results in removing the degeneracy of energies of the electronic states whose wave vectors have the component equal to the reverse period,  $q = \frac{2\pi}{d_z}$ .

Removal of the degeneracy occurs under action of the potential deformation perturbation subsequently in time during the period of the harmonic in the time moments for which the equality



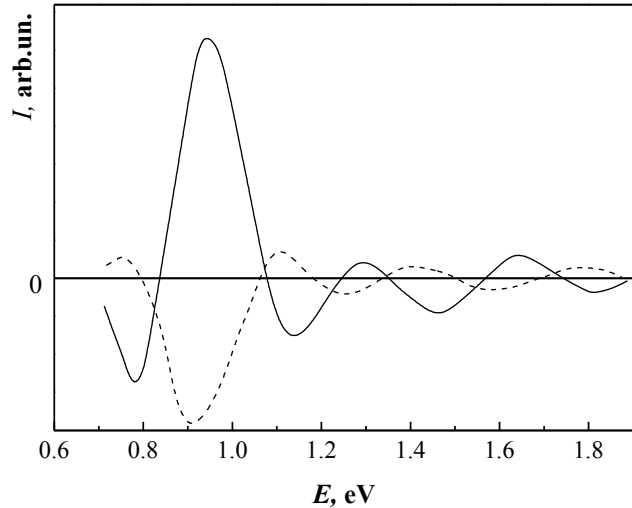
$$k_z = q = \frac{2\pi}{d_z^0} \cdot \frac{l_c + l_s \cdot \sin \Omega t_p}{d_{xy}}, \quad (7)$$

is satisfied.

One-to-one correspondence of the time moments  $t_p$  to the energies, whose degeneracy are removed, allows one to identify the energies of electronics states upon the time moments of the degeneracy removal. One of the experimental methods of measuring the time moments of removing the degeneracy of the given energy state is study of the time dependence of the monochromatic light absorption. A sudden change in the coefficient of interband absorption of the monochromatic light of the known frequency, which arises due to a sudden change of the interband electronic state density, can be registered by using the common radio-technical methods. Time changes of the absorption coefficient can be controlled by the direct measurements as well as by changing the physical quantities which depend on this absorption.

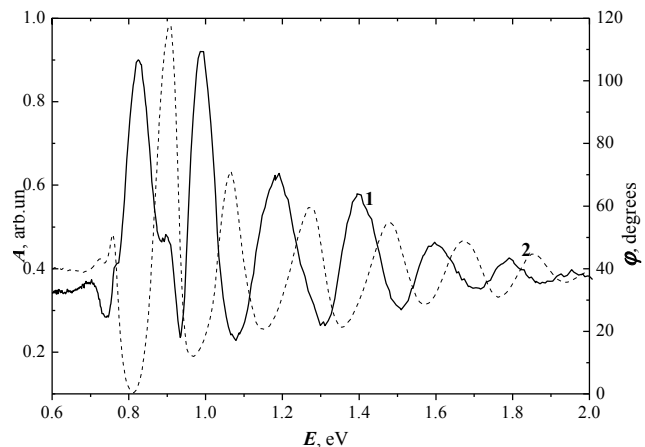
Experimentally the changes of electronic states structure, caused by the shearing deformation of layers, can be elucidated via time dependency of the monochromatic radiation absorbance monitored during the harmonic period. In [7.8] such dependencies were estimated by spectral variation of shift of the piezophotoconductivity phase with respect to the phase of deformation force. Below we present the experimental results the component of the piezophotoconductivity spectra of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  layered crystal, proportional to the product of a monochromatic light intensity and a value of mechanical stress. Fig.4 illustrates the spectral dependencies of synchronized and phase-shifted components of the piezophotoconductivity current of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  layered crystal. Fig.5 presents the spectra of piezophotoconductivity and phase shift of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  crystal.

The main results on the shearing investigation deformation allow us to draw the following conclusions. The shearing deformation consisting of both constant and harmonic components leads to the changes in constituent of lattice parameter  $d_z^0$  of a layered crystal. The value  $d_z$  is varied proportionally to the number of layers as, where  $n$  is an integer number determined by the equation  $d_{xy} = l \cdot n$ . Minimal values of  $d_z$  correspond to such values of shifts  $l$ , being divisible to  $d_{xy}$ .



**Fig.4. Spectral dependencies of in-phase (solid line) and phase-shifted (dash line) components of piezo-photoconductivity current of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  crystal.**

The variation of shifts  $l$  during the harmonics period leads to an appearance of a certain number of new values of  $d_z$ , which are realized in the corresponding time moments  $t_p$ . During the shearing deformation the value  $d_z$  changes discretely at the specific time moments. At that, the time dependency of the deformation perturbed potential is a sum of the slow component, dependent on frequency shift, and the short time component caused by a discrete shift. Those perturbations result in partial removing degeneracy of the electronic states whose  $k_z$  component of the wave vector is determined by (7). Degeneracy removal is realized at the time moments corresponding to that energy.



**Fig.5. Spectra of piezophotoconductivity and phase shift between current and deformation force of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  crystal (1 – amplitude, 2 – phase shift).**



One-to-one correspondence of the energies of the electronic states energies to the time moments of their degeneration removal allows determining the energy values by means of radio-technical measurements of the corresponding time moments. Such dependencies can be a basis for development of radio- technical analyzers of spectral composition of light without using dispersion elements [9].

### References

- [1]. D. M. Bercha, L. Yu. Kharkhalis, A. I. Bercha, M. Sznajder. Band Structure and Condensation States in  $\text{In}_4\text{Se}_3$  Crystal // *Phys. Status Solidi B*, 203(2), pp.427-440 (1997).
- [2]. M. Sznajder, L. Yu. Kharkhalis, K. Z. Rushchanskii, D. M. Bercha. Similarities of the band structure of  $\text{In}_4\text{Se}_3$  and InSe under pressure and peculiarities of the creation of the band gap // *Phys. Status Solidi B*, 243(3), pp.592-609 (2006).
- [3]. F. J. Manjón, D. Errandonea, A. Segura, V. Munoz, G. Tobias, P. Ordejón, E. Canadell. Experimental and theoretical study of band structure of InSe and  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{Se}$  under high pressure: Direct to indirect crossovers // *Phys. Rev. B*, 63(12), pp.125330 (2001).
- [4]. D. Errandonea, A. Segura, V. Munoz, A. Chevy. Effects of pressure and temperature on the dielectric constant of GaS, GaSe, and InSe: Role of the electronic contribution // *Phys. Rev. B*, 60(23), pp.15866-15874 (1999).
- [5]. J. Pellicer-Porres, A. Segura, V. Munoz, A. San Miguel. High-pressure X-ray absorption study of InSe // *Phys. Rev. B*, 60(6), pp.3757-3763 (1999).
- [6]. K. Z. Rushchanskii. The influence of hydrostatic pressure on the static and dynamic properties of InSe crystal: a first-principles study // *Physics of solid state*, 46(1), pp.179-187 (2004).
- [7]. Y. M. Stakhira, R. Y. Stakhira. Mechanism of non-stationary piezophotoconductivity spectrum formation in layered crystals // *Ukr. J. Phys.*, 58(12), pp.1159-1164 (2013).
- [8]. Y. Stakhira, R. Stakhira. Structure of spectra of time-dependent piezophotoconductivity // *Journal of Physical Studies*, 11(2), pp.215-219 (2007).
- [9]. Patent UA №108674: Stakhira Y. M., Stakhira R. Y., Belyukh V. M. Method of the determination of spectral components of light (2016).

Стаття надійшла до редакції 26.11.2017 р.

PACS 72.20.Jv, 42.50.Md

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119599>

## DEFORMATION MODULATION OF ELECTRONIC STATES IN LAYERED CRYSTALS

*Y. M. Stakhira*

Ivan Franko National University of Lviv,  
Faculty of Electronics and Computer Technologies,  
Dragomanov Str, 50, 79005, Lviv, Ukraine  
[stakhira@electronics.lnu.edu.ua](mailto:stakhira@electronics.lnu.edu.ua)

### Summary

The paper substantiates the intended creation of the discrete periods of crystalline lattice of layered crystals due the relative displacement of layers. The shear deformation of the layers retains unchanged the layered structure and basic physical parameters of the crystal, except for the change of the component of the period of crystalline lattice in the direction normal to the plane of the layers, which occurs discretely by the thickness of one layer. Deformation of a layered crystal gives rise to certain changes in the crystalline structure due which the corresponding changes in the coordinate dependence of the crystalline field potential are realized. In the case of deformation, which leads to the relative displacement of adjacent layers, the displacement takes place at relatively large distances of the macroscopic fragments of the crystalline structure what can lead to significant changes in the electronic states. It is shown that the main changes caused by the shift of the layers in the structure of electronic states are due to the processes of degeneration of the energies of these states. The dynamics of the degeneration of electronic states is established what makes it possible to identify them upon the time moments of removing the degeneracy. It is proved that structural changes of the energies of electronic states due to the shift of the layers can be experimentally established upon the time dependence during the harmonic period of the absorption coefficient of the monochromatic light, which plays the role of a monitor. This, in particular, opens the possibility of evaluating the spectral composition of the illuminating light upon the time dependence of its absorption by means of radiotechnical methods without using dispersing elements.

**Keywords:** layered crystals, shear deformation, modulation of electronic states

## ДЕФОРМАЦІЙНЕ МОДУЛЮВАННЯ ЕЛЕКТРОННИХ СТАНІВ У ШАРУВАТИХ КРИСТАЛАХ

*Й. М. Стахіра*

Львівський національний університет імені Івана Франка,  
факультет електроніки та комп'ютерних технологій,  
вул. Драгоманова, 50, 79005, Львів, Україна  
[stakhira@electronics.lnu.edu.ua](mailto:stakhira@electronics.lnu.edu.ua)

### Реферат

Обґрунтовано планомірне створення дискретних періодів кристалічної ґратки шаруватих кристалів відносним зсувом шарів. Деформація зсуву шарів зберігає шарувату структуру і основні фізичні параметри кристала за винятком зміни компоненти періоду кристалічної ґратки у напрямку, нормальному до площини шарів, яка відбувається дискретно на товщину одного шару. Деформація шаруватого кристала призводить до певних змін кристалічної структури, внаслідок яких реалізуються відповідні зміни координатної залежності потенціалу кристалічного поля. У випадку деформації, яка призводить до відносного зсуву сусідніх шарів, відбувається переміщення на відносно значні відстані макроскопічних фрагментів кристалічної структури, що може привести до суттєвих змін електронних станів. Показано, що основні зміни, спричинені зсувом шарів, у структурі електронних станів зумовлені процесами зняття виродження енергій цих станів. Встановлено динаміку зняття виродження електронних станів, що дає змогу ідентифікувати їх за моментами часу зняття виродження. З'ясовано, що експериментально структурні зміни енергій електронних станів, які зумовлені зсувом шарів контрольованими деформуючими силами, можуть бути встановлені за часовою залежністю протягом періоду гармоніки коефіцієнта поглинання монохроматичного світла, яке відіграє роль монітора. Це, зокрема, відкриває можливість оцінки спектрального складу опромінюючого світла за часовою залежністю його поглинання радіотехнічним способом без використання диспергуючих елементів.

**Ключові слова:** шаруваті кристали, деформація зсуву, модуляція електронних станів

# СЕНСОРИ ТА ІНФОРМАЦІЙНІ СИСТЕМИ

## SENSORS AND INFORMATION SYSTEMS

PACS 32.80Dz; UDC 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119600>

### NEW APPROACH AND MICROSYSTEM TECHNOLOGY TO MODELLING DYNAMICS OF ATMOSPHERE VENTILATION OF INDUSTRIAL CITY AND ELEMENTS OF THE “GREEN-CITY” CONSTRUCTION TECHNOLOGY

*O. Yu. Khetselius<sup>1</sup>, A. V. Glushkov<sup>1</sup>, Yu. Ya. Bunyakova<sup>1</sup>, V. V. Buyadzhi<sup>1</sup>, O. I. Bondar<sup>2</sup>,  
V. N. Vaschenko<sup>2</sup>, N. Bykowszczenko<sup>3</sup>*

<sup>1</sup> Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine  
E-mail: okhetsel@gmail.com

<sup>2</sup> State Ecological Academy of Post-Graduate Education and Management,  
Mitropolit V. Lipkivsky str.35, Bld.2, Kiev, 03035, Ukraine

<sup>3</sup> Institute of Chemistry and Environmental Protection, Technical University of Szczecin,  
Piaśtów 42 av., 71-065, Szczecin, Poland

### NEW APPROACH AND MICROSYSTEM TECHNOLOGY TO MODELLING DYNAMICS OF ATMOSPHERE VENTILATION OF INDUSTRIAL CITY AND ELEMENTS OF THE “GREEN-CITY” CONSTRUCTION TECHNOLOGY

*O. Yu. Khetselius, A. V. Glushkov, Yu. Ya. Bunyakova, V. V. Buyadzhi, O. I. Bondar, V. N. Vaschenko,  
N. Bykowszczenko*

**Abstract.** We present a new generalized physical-mathematical approach to modelling a natural air ventilation of the industrial city, which is based on the Arakawa-Shubert model, modified to calculate the current involvement of the ensemble of clouds. New quantitative approach is based on an new theory of the atmospheric ventilation combined with hydrodynamic forecast model (with correct quantitative accounting for the turbulence in an atmosphere of the urban zone) and the Arakawa-Shubert method of calculating the cumuli convection and shifting cumulus cloud ensemble from surrounding regions. An advanced mathematical methods for modelling an unsteady turbulence in the urban area are developed. For the first time methods of a plane complex field theory applied to calculate the air circulation for the cloud layer arrays, penetrating into the territory of the city. We also consider the mechanisms of transformation of the cloud system advection over the territory of the urban area. As illustration of a new approach we present the results of series of the computer

experiments on the calculation of the ventilation characteristics arising from the natural ventilation of the wind over the territory of the industrial city of Odessa. All above cited methods and models together with the standard monitoring, diagnosing and management measures can create a basis for a comprehensive "Green City" construction technology.

**Keywords:** atmospheric ventilation, new mathematical models, new microsystem technologies, "Green City" construction technology

## **НОВИЙ ПІДХІД І МІКРОСИСТЕМНА ТЕХНОЛОГІЯ МОДЕЛЮВАННЯ ДИНАМІКИ АТМОСФЕРНОЇ ВЕНТИЛЯЦІЇ ПРОМИСЛОВОГО МІСТА ТА ЕЛЕМЕНТИ ТЕХНОЛОГІЇ БУДІВНИЦТВА "GREEN-CITY"**

*О. Ю. Хецелиус, О. В. Глушков, Ю. Я. Бунякова, В. В. Буяджи, О. І. Бондарь, В. М. Ващенко,  
Н. Биковищенко*

**Анотація.** Ми представляємо новий узагальнений фізико-математичний підхід до моделювання природної вентиляції промислового міста, який заснований на моделі Аракава-Шуберта, модифікованій для розрахунку поточної участі ансамблю хмар. Новий кількісний підхід включає вдосконалену теорію атмосферної вентиляції в поєднанні з моделлю гідродинамічного прогнозу (з правильним кількісним урахуванням турбулентності в атмосфері міської зони) і методом Аракава-Шуберта розрахунку кучкової конвекції і зміщення купчасті хмарність ансамблю від оточуючих регіони. Розроблено вдосконалені математичні моделі моделювання нестійкої турбулентності в міській зоні. Вперше для розрахунку циркуляції повітря для масивів хмарного шару, що проникають на територію міста, застосовані методи теорії плоского комплексного поля. Ми також розглядаємо механізми трансформації адвекції хмарної системи на територію міста. В якості ілюстрації нового підходу ми представляємо результати серії комп'ютерних експериментів з розрахунку характеристик вентиляції, що виникають в результаті природної вентиляції вітру над територією м. Одеси. Всі наведені вище методи і моделі разом зі стандартними заходами моніторингу, діагностики та управління можуть створити основу для комплексної технології будівництва «Green City».

**Ключові слова:** атмосферна вентиляція, нові математичні моделі, нові мікросистемні технології, технологія будівництва "Грин сити "

## **НОВЫЙ ПОДХОД И МИКРОСИСТЕМНАЯ ТЕХНОЛОГИЯ МОДЕЛИРОВАНИЯ ДИНАМИКИ АТМОСФЕРНОЙ ВЕНТИЛЯЦИИ ПРОМЫШЛЕННОГО ГОРОДА И ЭЛЕМЕНТЫ ТЕХНОЛОГИИ ПОСТРОЕНИЯ "GREEN-CITY"**

*О. Ю. Хецелиус, А. В. Глушков, Ю. Я. Бунякова, В. В. Буяджи, О. И. Бондарь, В. Н. Ващенко,  
Н. Быковщенко*

**Анотация.** Мы представляем новый обобщенный физико-математический подход к моделированию естественной вентиляции промышленного города, который основан на модели Аракава-Шуберта, модифицированной для расчета текущего участия ансамбля облаков. Новый количественный подход включает усовершенствованную теорию атмосферной вентиляции в сочетании с моделью гидродинамического прогноза (с правильным количественным учетом



турбулентности в атмосфере городской зоны) и методом Аракава-Шуберта расчета кучевой конвекции и смещения кучевого облачного ансамбля от окружающих регионов. Разработаны усовершенствованные математические модели моделирования неустойчивой турбулентности в городской местности. Впервые для расчета циркуляции воздуха для массивов облачного слоя, проникающих на территорию города, применены методы теории плоского комплексного поля. Мы также рассматриваем механизмы трансформации адвекции облачной системы на территории городской территории. В качестве иллюстрации нового подхода мы представляем результаты серии компьютерных экспериментов по расчету характеристик вентиляции, возникающих в результате естественной вентиляции ветра над территорией г. Одессы. Все приведенные выше методы и модели вместе со стандартными мерами мониторинга, диагностики и управления могут создать основу для комплексной технологии строительства «Green City».

**Ключевые слова:** атмосферная вентиляция, новые математические модели, новые микросистемные технологии, технология построения «Грин сити»

### 1. Introduction

The desire to ensure a steady pace of economic development, which has, the organizational forms of the globalization of the world economy and industrialization acquired in recent years, can not be realized except through an increase in the already excessive burden on the environment. One of the negative consequences of these processes, known as man-made, is, in particular, a catastrophic increase in atmospheric pollution. About 200 million tons of carbon dioxide, more than 150 million tons of sulfur oxide, more than 500 million tons of hydrocarbons, more than 250 million tons of fine aerosols (dust), and many other harmful substances [1-4] annually emit into the atmosphere as a result of such activities. Although the development of global transport and communication systems rule out the possibility of localization of human influence on the environment, the big industrial cities are in the most difficult situation as here there are focused a huge industrial and transport complex, which is the main source of the environmental pollution, and including the atmosphere. One of the difficult aspects of the problem is that the composition of the atmosphere of the city is influenced by many factors, which include the characteristics of pollution sources, their location on the terrain, climatic and meteorological parameters, especially the city's architecture, processes of energy and transport, dissipative and relaxation, self-cleaning and regeneration, etc. [1-15]. A link between the individual factors is difficult enough, processes are mostly random. It follows that the solution to the problem of the industrial cities air protection, in particular, and the

environment as a whole requires a development of the principally new, comprehensive mathematical and ecological methods. It should be especially noted the importance and necessity of the development of modern methods of correct quantitative description of the dynamics of atmospheric venting in large industrial cities, where there are many companies with technological harmful emissions into the atmosphere.

At present time there are carried out a number of different models that allow to estimate the spatial structure of air pollution in the industrial cities, including scientific and methodical software package ISM (WMO), the American Environmental Protection Agency (AAER USA), Russian Geophysical Centre (Russia), Centre for Environment, Health and Welfare KIST (Korea) etc methods based on the laws of molecular diffusion, as well as a system of regression equations [1-5]. The most of these models have a number of fundamental flaws (model flare or molecular diffusion principle does not work if the atmosphere contains elements of convective instability) and at the application. The majority of the models are relatively simple and do not take into account the transience wind field, the mutual influence of the many sources of pollution and so on. Therefore, increasing the accuracy of prediction of air pollution and the underlying surface requires a development of principally new approach which takes into account all key physical and chemical factors etc. The peculiarity of the modern ecological situation is the technological level of use of laws of nature, associated with the transition from micro to macro level through molecular and

atomic levels. It should be especially underlined that nowadays there are many attempts to develop so called “green city” construction technologies throughout the world, however majority of these research and actions are linked only with the preliminary monitoring and diagnosing measures (e.g. [9,10]), in particular, development fundamental technologies such as 1) monitoring urban/indoor air pollution and modeling, 2) diagnosing hazardous urban pollutants and control, and 3) managing urban environment conditions through integrated network technology [2,3].

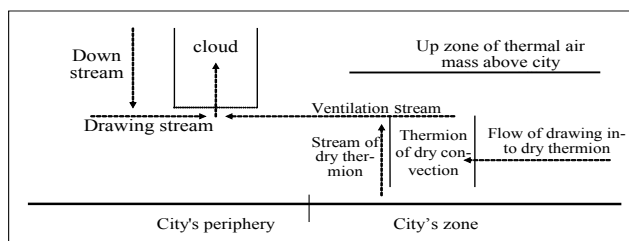
The strategical aim of our research is develop new “Green City” construction technology that includes not only monitoring, diagnosing and management measures, and a group of the physical, chemical, ecological blocks which allow to create new clean cities of a future. As a first step, here we briefly present a new generalized physical-mathematical model of the natural ventilation of the industrial city, which is based on the Arakawa-Shubert model, modified to calculate the current involvement of the ensemble of clouds.

We present advanced mathematical methods for modelling an unsteady turbulence in the urban area. The balance relation's calculations for the inside-urban zone turbulence have been carried out for turbulent regime kinetical energy equation. For the first time methods of a plane complex field theory applied to calculate the air circulation for the cloud layer arrays, penetrating into the territory of the city. We also consider the mechanisms of transformation of the cloud system advection over the territory of the urban area. We present a new effective scheme for calculation of the ventilation potential and stream's function of winds in the urban area. As illustration of a new approach we present the data of series of the computer experiments on the calculation of the ventilation characteristics arising from the natural ventilation of the wind over the territory of the industrial city of Odessa. All calculations are performed with using “Geomath”, “Superatom” and “Quantum Chaos” computational codes [2,3,12-16].

## 2. Mathematical modelling an atmospheric ventilation of the industrial city

Let us start from the a new generalized model of the atmospheric ventilation of the industrial

city, which is based on the Arakawa-Shubert model, modified to calculate the current involvement of the ensemble of clouds. Moreover we present a generalization of the Arakawa-Shubert method for calculation of the cloud work for situation of the city's landscape. To calculate the involving streams (the real involving masses effect is created due to misbalance of vertical and down-running streams), reaching the territory of city, the Arakawa-Shubert equations system for humidity and warm flow equations are solved [3,5]. Scheme of ventilation of the urban zone by air flows in a presence of the cloud's convection is presented in Figure 1 and explains the key physical processes in a system. The area of the horizontal section of dry thermion should be approximately equal to the area of the cloud base.



**Figure 1. Scheme of air driving between the city and its periphery.**

It is appropriate to note known effect of creation of meso-jets which are formed in the ventilation currents as the Couette flows. If square of aa cloud base is smaller than a square of cross-section of the dry thermion top, than the ventilation current can not be appeared due to a lack of power of a cloud in the formation of the involvement meso-jets. If a square of the cloud base is substantially larger than a square of cross-section of the dry thermion top, a ventilation current captures several dry thermions, or else compensate a mass-balance current by an involvement current from the periphery of the city. A signal of the destruction of the thermal air mass over the city is the appearance of convective cloudiness over the city territory. Basically convective clouds that move to the city territory, are formed by ridges on the secondary fronts or in the lines of convective instability arising in the synoptic processes, especially in the areas of the subtropics. Here it is extremely important to understand proportions

on the dynamics of the processes occurring in the city with the processes in the atmosphere over the city periphery. On top of the thermal mass of the city there is no restriction in the air exchange in the absence of a closed circulation there, “bordering” heat “hat” of the city [1-3]. However, an extract of the lower layer of air from the air basin of the city should take place through a vertical convection current in a dry thermion, as it is indicated on the scheme in Figure 1.

Otherwise, the process may be in antiphase state and the involvement currents on the periphery of the city are on the contrary to strengthen an air circulation around the perimeter of the thermal ring. It is also possible when in a case of powerful extract the convection currents in dry thermals will not have time to make up for extract from a top of the thermal mass of the city. As a consequence, in this case it will only be observed thinning of the thermal mass of the city without concomitant ventilation of the air lower layers. It is well known that the city area has a fairly complex geometric relief, so the application of our method in its pure form is possible only to a flat surface. However, the city itself creates complex flow in the area of the streets inherent in him, parks and squares. Therefore, the flow of air streams in the city far from isotropic. The horizontal turbulent eddies within the city are involving circulation currents. Therefore, all hypothesizes on the city isotropic turbulence are really transformed here into a complex picture of the complex anisotropic flow vortex structure. It is clear that the turbulent eddies over the urban area must be in the interaction resonant contact with the turbulent eddies of cloud-based arrays in order to obtain a successful air ventilation. In fact the currents of the front convection must coincide with currents of thermal convection of the city in the phase setting. It is clear from the fact that the antiphase state of vertical currents of the urban convective centers with convective currents of the cloud convection would mean mutually compensating the two mechanisms. Therefore, the involvement currents caused by the city convection shall not extinguish the involvement currents caused by cloud arrays on the border of the city. Hence one can see a logically clear necessity for a resonance effect in the involvement currents of both mechanisms mentioned herein. In the antiphase case, the involving

currents cancel each other and the city will be in a state of high-rise convective smog that often occurs and is manifested in the form of a thick haze over the city.

If  $A$  is a work of the convective cloud then it consists of the convection work and work of down falling streams in the neighbourhood of cloud:

$$\frac{dA}{dt} = 0 = \frac{dA}{dt_{conv}} + \frac{dA}{dt_{downstr.}}, \quad (1a)$$

$$\frac{dA}{dt_{downstr.}} = \int_0^{\lambda_{max}} m_B(\lambda') K(\lambda, \lambda') d\lambda',$$

Here  $m_B(\lambda)$  is an air mass, drawn into a cloud with velocity of drawing  $\lambda$ ; if

$$\frac{dA}{dt_{downstr.}} = F(\lambda), \quad \int_0^{\lambda_{max}} K(\lambda, \lambda') m_B(\lambda') d\lambda' + F(\lambda) = 0 \quad (1b)$$

is an mass balance equation in the convective thermik and  $K(\lambda, \lambda')$  is a nucleus of integral equation (1), which determines the dynamical interaction between neighbour clouds:

$$\beta \int_0^{\lambda_{max}} K(\lambda, \lambda') m_B(\lambda') d\lambda' + F(\lambda) = m_B(\lambda) \quad (2)$$

The solution of this Arakawa-Shubert type eq. with accounting for air streams superposition of synoptic process is:

$$m_B(\lambda) = F(\lambda) + \beta \int_0^{\lambda_{max}} F(s) \Gamma(\lambda, s; \beta) ds, \quad (3a)$$

where  $\Gamma(x, s; \beta)$  is an resolvent of the integral eq.(2):

$$\Gamma(\lambda, s; \beta) = \sum_{m=1}^{\infty} \beta^{m-1} K_m(\lambda, s) \quad (3b)$$

We determine the resolvent as expansion to the Loran set cycle in a complex plane  $\zeta$ ; its centre coincides with the centre of the urban heating island (spot) and internal cycle with its periphery. The external one can be moved beyond limits of the urban recreation zone. As result, one could obtain a representation for resolvent by the following Fourier expansion:

$$\Gamma = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n (\zeta - a)^n \quad (4)$$

$$c_n = \frac{1}{2\pi i} \oint_{|\zeta|=1} \frac{f(\zeta) d\zeta}{(\zeta - a)^{n+1}},$$

where  $a$  is centre of convergence ring of the Laurent series. Equations of atmosphere circulation above city's zone can be taken in an approximation of the "shallow water". Its solution is given by solution of the equations (1,2) and additionally can be bound by methods of the plane complex field theory. The cloud masses on the urban periphery can be defined in the wind field by the following formula (complex velocity potential):

$$v_x - iv_y = \frac{df}{d\zeta} = \frac{\Gamma}{2\pi i} \left[ \frac{1}{\zeta - \zeta_0} + \sum_{k=1}^{\infty} \left( \frac{1}{\zeta - \zeta_0 - kl} + \frac{1}{\zeta - \zeta_0 + kl} \right) \right] + \frac{d}{d\zeta} \left[ \sum_{k=1}^n \Gamma_k \ln(\zeta - b_k) \right] \quad (5)$$

Here  $\Gamma_k$  – circulation on the vortex elements, created by clouds;  $b_k$  – co-ordinates of this forming;  $r$  – circulation's on standard vortexes for the Carman chain;  $l$  – distance between standard vortexes for the Carman chain;  $\zeta$  – centre co-ordinate for line of convective perturbations or front divider;  $\zeta - kl$  – co-ordinate of beginning for line of convective perturbation;  $\zeta + kl$  – co-ordinate of the end for this line. Naturally, one could assume further that the possible convective perturbations in the periphery of the city come up to him in the form of convective ridges. The cited cloud ridges can be determined in a field of the vertical currents velocity and associated involvement currents. The method for calculation of the turbulence spectra inside the urban zone is based on the standard tensor equations of turbulent tensions (more detailed version will be presented in separated paper):

$$\begin{aligned} \frac{\partial \overline{u'_i u'_j}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\overline{u_k} \cdot \overline{u'_i u'_j} + \overline{u'_k u'_i u'_j}) + \frac{\partial \overline{p' u'_i}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{p' u'_j}}{\partial x_i} = \\ = -\overline{u'_i u'_k} \frac{\partial \overline{u_j}}{\partial x} - \overline{u'_j u'_k} \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x} + p' \left( \frac{\partial \overline{u'_i}}{\partial x} + \frac{\partial \overline{u'_j}}{\partial x} \right); \end{aligned} \quad (6)$$

Computing balance relationships for inside-urban zone is fulfilled on the basis of equation for kinetic energy of turbulent regime. The kinetic energy of fluctuations is defined as follows:  $b^2 = \overline{u'_k u'_k}$ . The corresponding equation for  $b$  is as follows:

$$\begin{aligned} \frac{\partial b}{\partial t} + \frac{\partial \overline{u_k} b^2}{\partial x_k} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\overline{u'_k u'_i u'_j} + 2\overline{u'_k p'}) = (7) \\ = -2\overline{u'_k u'_i} \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_k} - 2 \frac{g}{\Theta_0} \overline{w' \Theta'} \end{aligned}$$

Advection      Turbulent diffusion      Effect of forces of the tension      Interaction: Reynolds tension-averaged motion      Accounting for swimming forces

Here  $g$  is the magnitude of the acceleration vector due to the planet's gravity,  $\theta_0$  is the equilibrium potential temperature,  $\theta'$ ,  $p'$  are departures from equilibrium values.

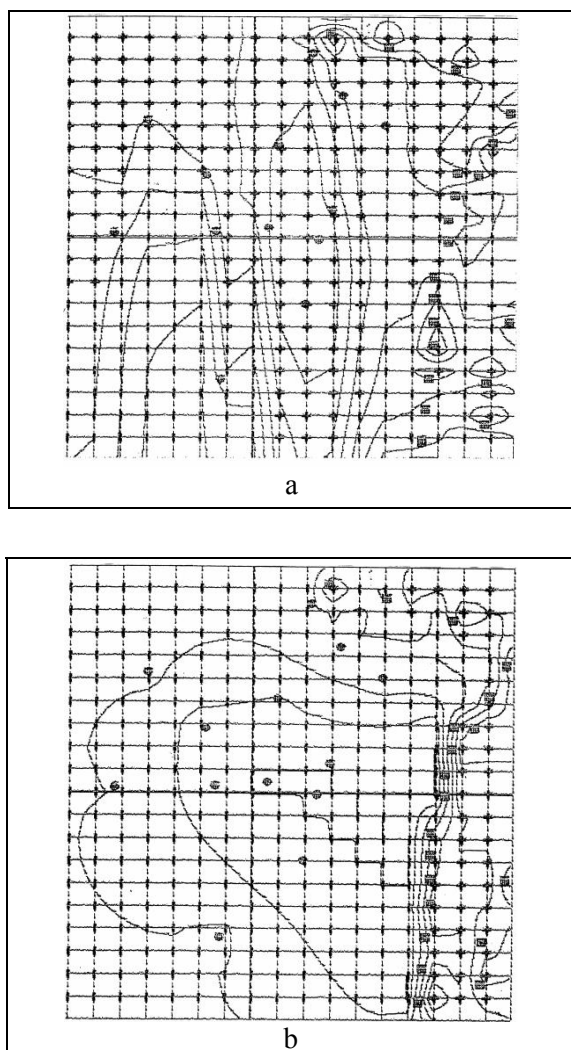
Equating the velocity components determined in the shallow water model and model (5), one could find the spectral matching between the wave numbers that define the functional elements in the Fourier-Bessel series with the source element of a plane field theory. At last, let us remind that any vector field  $u$  can be separated into rotational and divergent parts, i.e.,  $u = \Delta\psi + u_\chi$ . If the vector field is a horizontal wind, one can define a current function  $\psi$ , to express the rotational part, and a velocity potential  $\chi$ , to express the divergent part. Namely these parameters are of a great interest in applied analysis of an air ventilation in the urban zone.

### 3. The numerical results for air ventilation in Odessa and conclusions

As application of a new approach we carried out the PC simulation results on modelling the air ventilation for a number of the industrial cities: Odessa (Ukraine), Trieste (Italy), Aleppo (Syria). Below we are limited by data for Odessa. The experiments are fulfilled with using natural and model data on a cloudiness and convection intensities. All input data parameters are taken from [2,3]. Naturally the corresponding model situations on cloudiness are real and can be by a basis for the possible recreation measures within "Green city" construction technology. Basically, it was assumed that the cloud masses coming to the city by the lines of convective instability. The distance between the convective clouds was assumed to be 300 to 700 meters. The results of computing are presented in Figure 2. In Figure 2a we present the calculated field of a ventilation potential, which is equivalent to a field of potential in the complex velocity potential function. Note that the clouds are designed as black squares. The figure is oriented so that the sea is in the right part, the borders of a figure are corresponding to the borders of Odessa city. Approximately one can assume that the contours of the complex potential reflects the variation in time of the velocity field, namely 0.5 m/s for an hour. Density of current lines is adequate to the venting flows speed,



about 1 m/s to 0.5 cm of gradient in Figure. Analysis of the potential function gives the following: if  $v_x > 0$ , the velocity rate increases in the direction of positive foci (and similarly on y). This means that the potential function draws flow in positive foci. In figure a field of positive foci are marked with sign “+” and negative one – by sign “-”. Thickening a current function isolines means increasing a velocity. The direction of flow is obtained from the definition of the current function, i.e.,  $v_x > 0$ , if  $\partial\phi/\partial y > 0$ . It means an availability of positive foci of the current function from a flow direction. The isolines in the figure are not signed, because modular values depend on many factors, notably than intensity of convection, which determines the involvement currents power and a density of the cloud arrays.



**Figure 2. Potential of ventilation  $\chi$  (a) and current function  $\psi$  (b) for atmospheric situation, presented in Figure 2a (Odessa city).**

Figure 2a shows the results of computer simulation of the synoptic situation in Odessa, when the clouds run from the sea by two lines of convective disturbances and penetrate deep into the Gulf of Odessa and the city respectively. Besides, there are presented the dry thermions (marked by black circles in the figure) located in the city area. These dry thermions, on the one hand, create their involvement currents, but on the other hand, increase the intensity of the annular heat circulation. In this case (figure 2a) one can see the picture of penetration of an air ventilation for most of the city. However, in the current function field (Figure 2b), the penetration of ventilation is expressed more weakly. We considered only one synoptic situation example for Odessa city, which illustrates quite effective possibilities of our mathematical models to treat an atmospheric ventilation in the city (in principle, in any of the synoptic conditions). The knowledge of more or less realistic picture of the city's atmospheric ventilation allows further to carry out appropriate recreational activity to improve air quality and so on.

### References

- [1]. Grover A., Singh R. B., Analysis of urban heat island in relation to normalized difference vegetation index (ndvi): a comparative study of Delhi and Mumbai// Environm.-2015.-N2.-P. 125-138.
- [2]. Glushkov A. V., Prepelitsa G. P. and Svinarenko A. A., Geometry of Chaos I: Theoretical basis's of a consistent combined approach// Proc. Intern. Geom. Center.-2013.-Vol. 6(1).-P. 67.
- [3]. Gubanov E. R., Glushkov A. V., Khet-selius O. Yu., Bunyakova Yu. Ya., Buyadzhi V. V., Pavlenko E. P., New methods in analysis and project management of environmental activity: Electronic and radioactive waste. – Kharkiv: FOP.-2017.-120P.
- [4]. Glushkov A. V., Buyadzhi V. V., Kvasikova A. S., Ignatenko A. V., Kuznetsova A. A., Prepelitsa G. P., Ternovsky V. B., Non-linear chaotic dynamics of quantum systems: Molecules in an electromagnetic field and laser systems//Quantum Systems in Physics, Chemistry and Biology (Cham, Springer).-2017.-Vol. 30.-P. 169-180.
- [5]. Arakawa A., Shubert W. H., Interaction of cumulus cloud ensemble with the large-scale



environment//Journ. of Atm. Sci.-1974.-Vol. 31.-P. 674-701.

[6]. Glushkov A. V., Khokhlov V. N., Bunyakova Yu. Ya., Prepelitsa G. P., Svinarenko A. A., Tsenenko I. A. Sensing the nonlinear interaction between global teleconnection patterns: micro technology "Geomath"//Sensor Electr. and Microsyst. Techn.-2006.-N1.-P. 64-70.

[7]. Glushkov A. V., Khetselius O. Y., Brusentseva S. V., Zaichko P. A., Ternovsky V. B., Studying interaction dynamics of chaotic systems with in a non-linear prediction method: application to neurophysiology// Advances in Neural Networks, Fuzzy Systems and Artificial Intelligence.-2014.-Vol. 21.-P. 69-75.

[8]. Glushkov A. V., Svinarenko A. A., Buyadzhii V. V., Zaichko P., Ternovsky V., Chaos-geometric attractor and quantum neural networks approach to simulation chaotic evolutionary dynamics during perception process// Advances in Neural Networks, Fuzzy Systems and Artificial Intelligence.-2014.-Vol. 21.-P. 143-150.

[9]. Khetselius O. Yu., Forecasting evolutionary dynamics of chaotic systems using advanced non-linear prediction method// Dynamical Systems Applications, Eds. J. Awrejcewicz, M. Kazmierczak, P. Olejnik, J. Mrozowski.-2013.-Vol. T2.-P. 145-152.

[10]. Glushkov A. V., Relativistic Quantum Theory. Quantum mechanics of Atomic Systems.-Odessa: Astroprint, 2008.- 700P.

[11]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Svinarenko A. A., Prepelitsa G. P., Energy Approach to Atoms in a Laser Field and Quantum Dynamics with Laser Pulses of Different Shape// Coherence and Ultrashort Pulsed Emission

(Intech).-2010.-P. 159-186.

[12]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Loboda A. V., Svinarenko A. A., QED approach to atoms in a laser field: Multi-photon resonances and above threshold ionization//Frontiers in Quantum Systems in Chemistry and Physics (Springer).-2008.-Vol. 18.-P. 543-560.

[13]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Lovett L., Electron- $\beta$ -Nuclear Spectroscopy of Atoms and Molecules and Chemical Environment Effect on the  $\beta$ -Decay parameters// Advances in the Theory of Atomic and Molecular Systems Dynamics, Spectroscopy, Clusters, and Nanostructures. (Springer).-2009.-Vol. 20.-P. 125-152.

[14]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Malinovskaya S. V., Optics and spectroscopy of cooperative laser-electron nuclear processes in atomic and molecular systems- new trend in quantum optics// Europ. Phys. Journ. ST.-2008.-Vol. 160, Issue 1.-P. 195-204.

[15]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Malinovskaya S. V., Spectroscopy of cooperative laser-electron nuclear effects in multiautomic molecules// Molec. Phys.-2008.-Vol. 106.-P. 1257-1260.

[16]. Malinovskaya S. V., Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Lopatkin Yu., Loboda A. V., Svinarenko A., Nikola L., Perelygina T., Generalized energy approach for calculating electron collision cross-sections for multicharged ions in a plasma: Debye shielding model// Int. Journ. Quant. Chem.-2011.-Vol. 111,N2.-P. 288-296.

Стаття надійшла до редакції 01.12.2017 р.

PACS 32.80Dz; UDC 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119600>

## NEW APPROACH AND MICROSYSTEM TECHNOLOGY TO MODELLING DYNAMICS OF ATMOSPHERE VENTILATION OF INDUSTRIAL CITY AND ELEMENTS OF THE “GREEN-CITY” CONSTRUCTION TECHNOLOGY

*O. Yu. Khetselius<sup>1</sup>, A. V. Glushkov<sup>1</sup>, Yu. Ya. Bunyakova<sup>1</sup>, V. V. Buyadzhi<sup>1</sup>, O. I. Bondar<sup>2</sup>,  
V. N. Vaschenko<sup>2</sup>, N. Bykowszczenko<sup>3</sup>*

<sup>1</sup>Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine

E-mail: okhetsel@gmail.com

<sup>2</sup> State Ecological Academy of Post-Graduate Education and Management,  
Mitropolit V. Lipkivsky str.35, Bld.2, Kiev, 03035, Ukraine

<sup>3</sup>Institute of Chemistry and Environmental Protection, Technical University of Szczecin,  
Piastów 42 av., 71-065, Szczecin, Poland

### Summary

The aim of the work is to develop and present a new approach and correspondingly a new microsystem technology for advanced analysis, modelling and forecasting the temporal and spatial dynamics of atmospheric ventilation and apply it to quantitative studying a air ventilation for the concrete large industrial cities.

We present a new generalized physical-mathematical approach to modelling a natural air ventilation of the industrial city, which is based on the Arakawa-Shubert model, modified to calculate the current involvement of the ensemble of clouds. New quantitative approach is based on an new theory of the atmospheric ventilation combined with hydrodynamic forecast model (with correct quantitative accounting for the turbulence in an atmosphere of the urban zone) and the Arakawa-Shubert method of calculating the cumuli convection and shifting cumulus cloud ensemble from surrounding regions. An advanced mathematical methods for modelling an unsteady turbulence in the urban area are developed. For the first time methods of a plane complex field theory applied to calculate the air circulation for the cloud layer arrays, penetrating into the territory of the city. We also consider the mechanisms of transformation of the cloud system advection over the territory of the urban area.

As illustration of a new approach we present the results of series of the computer experiments on determination of the ventilation characteristics (velocity potential etc) arising from the natural ventilation of the wind over the territory of the industrial city of Odessa. For example, the results of computer simulation of the synoptic situation in Odessa, when the clouds run from the sea by two lines of convective disturbances and penetrate deep into the Gulf of Odessa and the city respectively. The dry thermions, on the one hand, create their involvement currents, but on the other hand, increase the intensity of the annular heat circulation.

The approach (all above cited methods and models) together with the corresponding standard monitoring, diagnosing, ecological, economical, logistic and management blocks provides a basis for a comprehensive “Green City” (or Smart-City) construction technology.

**Keywords:** atmospheric ventilation, new mathematical models, new microsystem technologies, “green city” construction technology

PACS 32.80Dz; УДК 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119600>

## НОВИЙ ПІДХІД І МІКРОСИСТЕМНА ТЕХНОЛОГІЯ МОДЕЛЮВАННЯ ДИНАМІКИ АТМОСФЕРНОЇ ВЕНТИЛЯЦІЇ ПРОМИСЛОВОГО МІСТА ТА ЕЛЕМЕНТИ ТЕХНОЛОГІЇ БУДІВНИЦТВА “GREEN-CITY”

*О. Ю. Хецеліус<sup>1</sup>, О. В. Глушков<sup>1</sup>, Ю. Я. Бунякова<sup>1</sup>, В. В. Буяджи<sup>1</sup>, О. І. Бондарь<sup>2</sup>,  
В. М. Ващенко<sup>2</sup>, Н. Биковищенко<sup>3</sup>*

<sup>1</sup>Одеський державний екологічний університет, Львівська 15, Одеса, 65016, Україна  
E-mail: okhetsel@gmail.com

<sup>2</sup>Державна екологічна академія післядипломної освіти та управління,  
вул. Мітрополіта Ліпівського, Київ, 03035, Україна

<sup>3</sup>Інститут хімії та охорони навколишнього середовища, Технічний університет Щеціна,  
вул. Піастов, 42, 71-065, Щецін, Польща

### Реферат

Метою роботи є розробка та представлення нового підходу та, відповідно, нової мікросистемної технології для поглибленого аналізу, моделювання та прогнозування часової та просторової динаміки атмосферної вентиляції та її застосування для кількісного вивчення вентиляції повітря для прикладі конкретних великих промислових міст.

Ми представляємо новий узагальнений фізико-математичний підхід до моделювання природної вентиляції промислового міста, який заснований на моделі Аракава-Шуберта, модифікованої для розрахунку поточної участі ансамблю хмар. Новий кількісний підхід включає вдосконалену теорію атмосферної вентиляції в поєднанні з моделлю гідродинамічного прогнозу (з правильним кількісним урахуванням турбулентності в атмосфері міської зони) і методом Аракава-Шуберта розрахунку кучкової конвекції і зміщення купчасті хмарність ансамблю від оточуючих регіонів. Розроблено вдосконалені математичні моделі моделювання нестійкої турбулентності в міській зоні. Вперше для розрахунку циркуляції повітря для масивів хмарного шару, що проникають на територію міста, застосовані методи теорії плоского комплексного поля. Ми також розглядаємо механізми трансформації адвекції хмарної системи на територію міста.

В якості ілюстрації нового підходу ми представляємо результати серії комп'ютерних експериментів з розрахунку характеристик вентиляції, що виникають в результаті природної вентиляції вітру над територією м. Одеси. Наприклад, докладно проаналізовані дані комп'ютерного моделювання синоптичної ситуації в Одесі, коли хмари протікають з моря двома лініями конвективних порушень і проникають глибоко в Одеський затоку та місто відповідно. Сухі терміки, з одного боку, створюють їх потоки залучення, але, з іншого боку, збільшують інтенсивність кільцевої теплової циркуляції міста.

Новий підхід (всі наведені вище методи та моделі) разом із відповідним стандартним моніторингом, діагностикою, екологічним, економічним, логістичним та управлінським блоками є основою для нової технології будівництва “Зеленого міста” (або “Смарт-Сіті”).

**Ключові слова:** атмосферна вентиляція, нові математичні моделі, нові мікросистемні технології, технологія будівництва «зеленого міста»

# СЕНСОРИ ТА ІНФОРМАЦІЙНІ СИСТЕМИ

---

## SENSORS AND INFORMATION SYSTEMS

---

---

PACS: 42.68.Bz, 47.85.Np, 92.60.hk; UDC 539.192  
DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119603>

### **NEW BALANCE APPROACH TO THE MODELING OF MACROTURBULENT ATMOSPHERIC DYNAMICS, SPATIAL DISTRIBUTION OF RADIONUCLIDES IN THE GLOBAL ATMOSPHERE, THEIR ENVIRONMENT IMPACT AFTER THE NUCLEAR ACCIDENT AT FUKUSHIMA NUCLEAR POWER PLANT**

*A. V. Glushkov, A. V. Romanova, V. V. Buyadzhi, E. V. Bakunina, O. Yu. Khetselius, A. A. Svinarenko,  
A. S. Belodonov*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine  
E-mail: [buyadzhivv@gmail.com](mailto:buyadzhivv@gmail.com)

### **NEW BALANCE APPROACH TO THE MODELING OF MACROTURBULENT ATMOSPHERIC DYNAMICS, SPATIAL DISTRIBUTION OF RADIONUCLIDES IN THE GLOBAL ATMOSPHERE, THEIR ENVIRONMENT IMPACT AFTER THE NUCLEAR ACCIDENT AT FUKUSHIMA NUCLEAR POWER PLANT**

*A. V. Glushkov, A. V. Romanova, V. V. Buyadzhi, E. V. Bakunina, O. Yu. Khetselius, A. A. Svinarenko,  
A. S. Belodonov*

**Abstract.** We present the elements of a new advanced non-stationary theory of global mechanisms in atmospheric low-frequency processes, teleconnection effects to modelling global atmospheric behaviour, dispersion of radionuclides, assessing radioactivity impact of the Fukushima (Chernobyl) nuclear accidents on the environment. The approach is based on the energy, moment balance relationships for the global atmospheric low-frequency processes, atmospheric macroturbulence theory, link of tropospheric waveguides with atmospheric moisture circulation and, accordingly, with the shape of the atmospheric circulation over the position of the front sections of (atmospheric fronts as the main drives moisture). Atmospheric moisture cycle is linked with such typical low-frequency process as the angular momentum balance; the latter accounts violation of the atmosphere rotating balance with the Earth, which may be under developing meridional processes with the implementation of the mass transfer of air and steam between the tropical latitudes (with a large linear velocity) and slowly rotating

air masses of the polar latitudes (a process of slow teleconnection). The approach is realized and implemented into the new microsystem technology "GeoMath-RadEnv" and focused on the testing and prediction of the air mass (particles) flows in the global atmospheric picture, determination of the new predictors for long-term and very long-forecasts of low-frequency atmospheric processes. PC experiments demonstrated the effectiveness of the approach in applying to modeling the balance of angular momentum, the transfer of atmospheric masses (moisture flow) with respect to the genesis of tropospheric waveguides, the continuity of atmospheric circulation forms (telecommunication, front-genesis). The application of the method to the modeling of global atmospheric behavior, the scattering of radionuclides after accidents at the nuclear power plant in Fukushima (Chernobyl) demonstrates its effectiveness, which is confirmed by the physically reasonable agreement between the predicted and measured spatial distribution of radionuclides in the atmosphere, the direction and dynamics of the flows of air masses (particles).

**Keywords:** atmospheric low-frequency processes, energy and angular momentum balance, teleconnection, global atmospheric behaviour and dispersion of radionuclides, nuclear power plant accidents and radiation-environmental consequences

### **НОВИЙ БАЛАНСОВИЙ ПІДХІД ДО МОДЕЛЮВАННЯ МАКРОТУРБУЛЕНТНОЇ АТМОСФЕРНОЇ ДИНАМІКИ, ПРОСТОРОВОГО РОЗПОДІЛУ РАДІОНУКЛІДІВ В ГЛОБАЛЬНІЙ АТМОСФЕРІ, ЇХ ВПЛИВУ НА НАВКОЛИШНЄ СЕРЕДОВИЩЕ ПІСЛЯ ЯДЕРНОЇ АВАРІЇ НА АЕС ФУКУСІМА**

*А. В. Глушков, А. В. Романова, В. В. Буяджи, Е. В. Бакунина, О. Ю. Хецеліус, А. А. Свинаренко, А. С. Белодонов*

**Анотація.** Ми представляємо елементи нового нестационарної теорії, що описує глобальні механізми в атмосферних низькочастотних процесах, ефекти телеконнекції та ін. для моделювання глобальної атмосферної поведінки, просторово-часового розподілу (дисперсії) радіонуклідів, оцінки радіоактивного впливу наслідків аварій на атомних електростанціях Фукусіма (Чорнобиль) на навколишнє середовище. Цей підхід заснований на використанні балансових співвідношень для енергії та кутового моменту в глобальних атмосферних низькочастотних процесах, теорії атмосферної макротурбулентності, атмосферного вологообороту у подальшому зв'язку з генезисом тропосферних радіохвильоводів і наступністю форм атмосферної циркуляції (телеконнекція, генезис фронтів), виявленні нових предикторів в середньо- і довгостроковому прогнозуванні динаміки низькочастотних атмосферних процесів. В рамках теорії виявлений зв'язок так званих тропосферних радіохвильоводів з атмосферним вологооборотом і відповідно з формою атмосферної циркуляції через положення фронтальних розділів (атмосферних фронтів як основних накопичувачів вологи). Атмосферний вологооборот пов'язаний з таким типово низькочастотним процесом як виконання балансу по енергії та кутовому моменту атмосфери. Останній характеризує порушення балансу обертання атмосфери разом із Землею, яке може проходити при розвитку меридіональних процесів із здійсненням перенесення маси повітря і пара між тропічними широтами (з великою лінійною швидкістю) і повільно обертаються повітряними масами приполярних широт (процес повільної телеконнекції). Підхід реалізований у вигляді нової мікросистемної технології "GeoMath-RadEnv" і орієнтований на тестування і прогнозування потоків руху повітряних мас (частинок, радіонуклідів) в глобальній атмосферній картині, визначення нових предикторів для середньо- і довгострокового



прогнозування низькочастотних атмосферних процесів. ПК-експерименти продемонстрували ефективність підходу в застосуванні до моделювання балансу кутового моменту, переносу атмосферних мас (вологообороту) по відношенню до генезису тропосферних радіохвилеводів, наступності форм атмосферної циркуляції (телезв'язок, фронт-генезис). Застосування методу до моделювання глобальної атмосферного поведінки, розсіювання радіонуклідів після аварії на атомній електростанції Фукусіма (Чорнобиль) демонструє його ефективність, що підтверджується фізично розумним згодою між передбаченим і вимірним просторовим розподілом радіонуклідів в атмосфері, напрямком і динамікою потоків руху повітряних мас (часток).

**Ключові слова:** атмосферні низькочастотні процеси, баланс енергії та кутових моментів, телекомунікації, глобальна атмосферна поведінка та дисперсія радіонуклідів, аварії на атомних електростанціях та радіаційно-екологічні наслідки

### **НОВЫЙ БАЛАНСНЫЙ ПОДХОД К МОДЕЛИРОВАНИЮ МАКРОТУРБУЛЕНТНОЙ АТМОСФЕРНОЙ ДИНАМИКИ, ПРОСТРАНСТВЕННОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ГЛОБАЛЬНОЙ АТМОСФЕРЕ, ИХ ВОЗДЕЙСТВИЯ НА ОКРУЖАЮЩУЮ СРЕДУ ПОСЛЕ ЯДЕРНОЙ АВАРИИ НА АЭС ФУКУСИМА**

*А. В. Глушков, А. В. Романова, В. В. Буяджи, Е. В. Бакунина, О. Ю. Хецелиус,  
А. А. Свинарченко, А. С. Белодонов*

**Аннотация.** Мы представляем элементы нового нестационарной теории, описывающей глобальные механизмы в атмосферных низкочастотных процессах, эффекты телеконнекции и др. для моделирования глобального атмосферного поведения, дисперсии радионуклидов, оценки радиоактивного воздействия последствий аварий на атомных электростанциях Фукусима (Чернобыль) окружающую среду. Этот подход основан на использовании балансовых соотношений для энергии и углового момента для глобальных атмосферных низкочастотных процессов, теории атмосферной макротурбулентности, атмосферного влагооборота в дальнейшей связи с генезисом тропосферных радиоволноводов и преемственностью форм атмосферной циркуляции (телеконнекция, генезис фронтов), выявлении новых предикторов в средне- и долго-срочном прогнозировании динамики низкочастотных атмосферных процессов. В рамках теории выявлена связь так называемых тропосферных радиоволноводов с атмосферным влагооборотом и соответственно с формой атмосферной циркуляции через положение фронтальных разделов (атмосферных фронтов как основных накопителей влаги). Атмосферный влагооборот связан с таким типично низкочастотным процессом как выполнение баланса по энергии и угловому моменту атмосферы. Последний характеризует нарушение баланса вращения атмосферы вместе с Землей, которое может проходить при развитии меридиональных процессов с осуществлением переноса массы воздуха и пара между тропическими широтами (с большой линейной скоростью) и медленно вращающимися воздушными массами приполярных широт (процесс медленной телеконнекции). Подход реализован в виде новой микросистемной технологии "GeoMath-RadEnv" и ориентирован на тестирование и прогнозирование потоков движения воздушных масс (частиц) в глобальной атмосферной картине, определение новых предикторов для средне- и долго-срочного прогнозирования низкочастотных атмосферных процессов. ПК-эксперименты продемонстрировали эффективность подхода в применении к моделированию баланса углового момента, переносу атмосферных масс (влагооборота) по отношению к генезису тропосферных радиоволноводов, преемственности форм атмосферной циркуляции

(телесвязь, фронт-генезис). Применение метода к моделированию глобального атмосферного поведения, рассеяния радионуклидов после ядерной аварии на атомных электростанциях Фукусима (Чернобыль) демонстрирует его эффективность, что подтверждается физически разумным согласием между предсказанным и измеренным пространственным распределением радионуклидов в атмосфере, направлением и динамикой потоков движения воздушных масс (частиц).

**Ключевые слова:** атмосферные низкочастотные процессы, баланс энергии и углового момента, телесвязь, глобальное атмосферное поведение и дисперсия радионуклидов, аварии на АЭС и радиационно-экологические последствия

## 1. Introduction

In development of earlier works [1-7], in this paper we present the elements of a new advanced non-stationary theory of global mechanisms in atmospheric low-frequency processes, teleconnection effects to modelling global atmospheric behaviour, dispersion of radionuclides, assessing the radioactivity impact of the Fukushima (Chernobyl) nuclear accidents on the environment. The approach is based on the energy, moment balance relationships for the global atmospheric low-frequency processes, atmospheric macro-turbulence theory, link of tropospheric waveguides with atmospheric moisture circulation and, accordingly, with the shape of the atmospheric circulation over the position of the front sections of (atmospheric fronts as the main drives moisture). The approach is realized and implemented into the new microsystem technology “RadEnv-Math” and focused on the testing and prediction of the air mass (particles) flows in the global atmospheric picture, determination of the new predictors for long-term and very long-forecasts of low-frequency atmospheric processes. The application of the method to the modelling of global atmospheric behaviour, the scattering of radionuclides after accidents at the nuclear power plant in Fukushima (Chernobyl) demonstrates its effectiveness, which is confirmed by the physically reasonable agreement between the predicted and measured spatial distribution of radionuclides in the atmosphere, the direction and dynamics of the flows of air masses (particles).

It should be noted that at present time there are different, quite consistent approaches to modelling global atmospheric processes and respectively the methods of modelling temporal and spatial dispersion of the radionuclides in atmosphere and

other geospheres, (look for example, [1-4]). One should mention such methods as MLDP0 (Modèle Lagrangien de Dispersion de Particules d'ordre 0 e Canada), HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model e United States), NAME (Numerical Atmospheric-dispersion Modelling Environment e United Kingdom), RATM (Regional Atmospheric Transport Model e Japan), and FLEXPART (Lagrangian Particle Dispersion Model e Austria). All the ATDMs are of a class of models called Lagrangian Particle Dispersion Models (LPDMs) and others (see, for example, [7,8] and Refs. therein), nevertheless quantitatively correct description of the global atmospheric processes and modelling temporal and spatial dispersion of the radionuclides in atmosphere after accidents at the nuclear power plants etc remains very important, actual and hitherto unsolved problem. The results on the corresponding modelling demonstrate as partly reasonable agreement of the predicted and measured spatial distribution of radionuclides in the atmosphere, the direction and dynamics of the flows of air masses (particles) as the significant disagreement.

## 2. Global mechanisms in atmospheric low-frequency processes, balance of the angular momentum of the Earth, teleconnection effects: Effective approach

Here we present the fundamental basis's of a new advanced non-stationary approach to global mechanisms in atmospheric low-frequency processes, the balance of the Earth angular momentum, teleconnection effects and atmospheric radio waveguides. The approach has been realized as a new geophysical microsystem technology “Geo-Math-RadEnv” [1-4]. The topics studied are of a great interest for modern physics of large-scaled

atmosphere processes (see also Ref. [3-10]). As the key elements of our theory were in details presented earlier, here we are limited only by the key advanced aspects. An advanced non-stationary angular momentum balance equation of in the planetary dynamic movements of air masses is written in the following standard integral form [2,4]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \int \rho M dV = \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} \int_0^H \int_0^{2\pi} \rho v M d\varphi dz d\lambda + \int_0^H \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} \int_0^{2\pi} (p_E^i - p_W^i) a \cos \varphi dz d\varphi d\lambda + \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} \int_0^{2\pi} \int_0^H \tau_0 a \cos \varphi d\varphi d\lambda 2\pi, \quad (1)$$

where  $M = \Omega a^2 \cos \varphi + u a \cos \varphi$  - angular momentum;  $\Omega$  - the angular velocity of rotation of the Earth;  $a$  - radius of the Earth;  $\varphi$  - Latitude ( $\varphi_1$  -  $\varphi_2$  - separated latitudinal belt between the Arctic and polar fronts);  $\lambda$  - longitude;  $u$ ,  $v$  - zonal and meridional components of the wind velocity;  $\rho$  - air density;  $V$  - the entire volume of the atmosphere in this latitude belt from sea level to the average height of the elevated troposphere waveguide -  $H$  (in notations [139]  $H = \infty$ );  $p_E^i - p_W^i$  - the pressure difference between the eastern and western slopes of the  $i$ -th mountains;  $z$  - height above sea level;  $\tau_0$  - the shear stress on the surface.

From the point of view of physics, the cycle of balance of angular momentum in the contact zones with the hydrosphere and lithosphere becomes a singularity. This singularity can be detected through the occurrence of zones of fronts and soliton-type front. Then the kernel of equation (1) can be defined in the density functional ensemble of complex velocity potential [2,3]

$$f = \overline{v_\infty} z + \frac{1}{2\pi} \sum_{k=1}^n q_k \ln(z - a_k) + \frac{1}{2\pi} \sum_{k=1}^p \frac{M_k e^{\alpha_k i}}{z - c_k} - \frac{i}{2\pi} \sum_{k=1}^m \Gamma_k \ln(z - b_k) \quad (2)$$

and the complex velocity, respectively, will be

$$v = \frac{df}{dz} = \overline{v_\infty} + \frac{1}{2\pi} \sum_{k=1}^n \frac{q_k}{z - a_k} - \frac{1}{2\pi} \sum_{k=1}^p \frac{M_k e^{\alpha_k i}}{(z - c_k)^2} - \frac{i}{2\pi} \sum_{k=1}^m \Gamma_k / (z - b_k), \quad (3)$$

where  $w$  - complex potential;  $v_\infty$  - complex velocity general circulation background (mainly zonal

circulation);  $b_k$  - coordinates of vortex sources in the area of singularity;  $c_k$  - coordinates of the dipoles in the area of singularity;  $a_k$  - coordinates of the vortex points in areas of singularity;  $M_k$  - values of momenta of these dipoles;  $\alpha_k$  - orientation of the axes of the dipoles;  $\Gamma_k$ ,  $q_k$  - values of circulation in the vortex sources and vortex points, respectively.

In the scheme by Oort [9] the Hadley circulation cell in angular momentum in the north part runs into a zone of the Arctic front, and at the time of the lithosphere it is included in the coverage of the polar front. Convergence of these atmospheric fronts could then close the cycle of atmospheric angular momentum balance in the same frequency range of atmospheric fluctuations without giving effect by an ocean and the lithosphere. Of course, the Hadley tropical cell carries teleconnection of the polar front with southern process by means of the link mechanism which is similar to link between the tropical and polar fronts or the Hadley tropical cell with a cell Hadley of temperate latitudes. The balance of angular momentum in conditions of the close convergence of the Arctic and Polar fronts over the ocean (which is almost always in all seasons and over the continents in the summer and in the transition seasons) is largely respected by centrifugal "pull" moisture along the front section of the polar front to south of the center of the cyclonic-depressive these. The physical features of the atmospheric ventilation predetermine the necessary modification of the well-known Arakawa-Schubert model. The model includes the budget equations for mass, moist static energy, total water content plus the equations of motion (look details in [10]). In [10] it is also defined a cloud work function which is an integral measure of the buoyancy force in the clouds. If  $A$  is a work of the convective cloud then it consists of the convection work and work of down falling streams in the neighbourhood of a cloud:

$$dA/dt = dA/dt_{conv} + dA/dt_{downstr}, \quad (4)$$

$$dA/dt_{downstr} = \int_0^{\lambda_{max}} m_B(\lambda') K(\lambda, \lambda') d\lambda'.$$

Here  $\lambda$  is a velocity of involvement,  $m_B(\lambda)$  is an air mass flux,  $K(\lambda, \lambda')$  is the Arakawa-Schubert integral equation kernel, which determines

the dynamical interaction between the neighbours clouds. The actual form of  $K(\lambda, \lambda')$  and  $F(\lambda)$  as well as their derivations are given in Appendix B [10]. If

$$\frac{dA}{dt} \text{ downstr.} = F(\lambda) \quad (5)$$

$$\int_0^{\lambda_{\max}} K(\lambda, \lambda') m_B(\lambda') d\lambda' + F(\lambda) = 0$$

is an mass balance equation in the convective element (thermal), then one could write [2]:

$$m_B(\lambda) = F(\lambda) + \beta \int_0^{\lambda_{\max}} m_B(\lambda') K(\lambda, \lambda') d\lambda' \quad (6)$$

Here  $\beta$  is parameter which determines disbalance of cloud work due to the return of part of the cloud energy to the organization of a wind field in their vicinity, and balance regulating its contribution to the synoptic processes. The solution of the Eq. (6) with accounting for air stream superposition of the synoptic processes can be determined by a resolvent method (see [2-5]):

$$m_B(\lambda) = F(\lambda) + \beta \int_0^{\lambda_{\max}} F(s) \Gamma(\lambda, s; \beta) ds, \quad (7)$$

where  $\Gamma(x, s; \beta)$  is an resolvent of the integral Eq.(7):

$$\Gamma(\lambda, s; \beta) = \sum_{m=1}^{\infty} \beta^{m-1} K_m(\lambda, s); \quad (8)$$

$$K_m(x, s) = \int_0^{\lambda_{\max}} \dots \int_0^{\lambda_{\max}} K(x, t_1) K(t_1, t_2) \dots K(t_{m-1}, s) dt_1 dt_2 \dots dt_{m-1} \quad (9)$$

The key idea [2] is to determine the resolvent as an expansion to the Laurent series in a complex plane  $\zeta$ . As result, one could obtain a representation for resolvent by the following Fourier expansion:

$$\Gamma = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n (\zeta - a)^n$$

$$c_n = \frac{1}{2\pi i} \oint_{|\zeta|=1} \frac{\phi(\zeta) d\zeta}{(\zeta - a)^{n+1}} \quad (10)$$

where  $a$  is centre of convergence ring of the Laurent series.

Further we consider an advanced spectral analogue for equation of motion for dynamics of the atmosphere in the low frequency range. As it is

well known, the shape of the atmospheric circulation changes its position in space, and the intensity of manifestations varies in the period up to several days, while inside it implemented processes, lasting a few minutes, such as precipitation. Hydrodynamic equations are set to reasonably high-frequency processes in the atmosphere of the evolution of the cyclonic type of education in the period up to two days, but it is not able to well describe the low-frequency processes such as change of the circulation forms.

At the same time the macroturbulent atmosphere equations are low-frequency ones in its basis and there is a lot of experience of their decision on the basis of spectral methods (see [1-3]. This allows you to use them for our purposes for the mathematical modeling of the changing forms of circulation and, respectively, for the mathematical parameterization homologues circulation [1-3].

In order to solve this task, one should involve coupling moments forecasting model, which we know from the system of the Reynolds equations with implemented average and fluctuation motion.

The method for calculating a turbulence spectra should be based on the standard tensor equations of turbulent tensions. As usually, it is convenient to partition velocity  $\mathbf{u}(v_x, v_y, w)$ , pressure  $p$ , temperature  $\theta$  etc into equilibrium and departures from equilibrium values (for example:  $p = p_0 + p'$  etc). One could write the system of equations for the Reynolds tensions, moments of connection of the velocity pulsations with entropy ones and the corresponding closure equations. The technique of using Reynolds tension tensors of the second rank is well known (for example, in the form of an analytical representation). The circuit equations with accounting the Coriolis force in the analytical form can be rewritten as (according [2,3]):

$$\begin{aligned} \frac{\partial V'^2}{\partial t} = & -\frac{i}{a} \left[ \overline{V'^2} L_1(\overline{V}) + 2\overline{V} \overline{V' L_1(V')} + \overline{V'^2} L_1(V') \right] - \\ & -\frac{i}{a} \left[ L_2(\overline{V}) \overline{V' U'} + \overline{V} \overline{U' L_2(V')} + \overline{U' V' L_2(V')} + \overline{V' U' L_2(V')} \right] + \\ & + 4\omega i \cos \theta \overline{V'^2} + \frac{2i}{a} \overline{V' L_6(\Phi')}, \end{aligned} \quad (11a)$$



$$\begin{aligned} \frac{\partial U'^2}{\partial t} = & -\frac{i}{a} [\overline{V'U'L_3(U)} + \overline{V'U'L_3(U')} + \overline{U'V'L_3(U)} + \overline{U'V'L_3(U')}] - \\ & -\frac{i}{a} [\overline{U'^2L_4(U)} + 2\overline{U'U'L_4(U')} + \overline{U'^2L_4(U')}] - \\ & -4\omega i \cos \theta \overline{U'^2} + \frac{2i}{a} \overline{U'L_5(\Phi')}, \end{aligned} \quad (11b)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \overline{V'U'}}{\partial t} = & -\frac{i}{2a} [\overline{V'^2L_3(U)} + 2\overline{V'V'L_3(U')} + \overline{V'^2L_3(U')}] - \\ & -\frac{i}{2a} [\overline{V'U'L_4(U)} + \overline{U'V'L_4(U')} + \overline{V'U'L_4(U')} + \overline{V'U'L_4(U')}] + \\ & + \frac{i}{a} \overline{V'L_6(\Phi')} - \frac{i}{2a} [\overline{U'^2L_2(V)} + 2\overline{U'U'L_2(U')}] - \\ & -\frac{i}{2a} [\overline{U'V'L_1(V)} + \overline{U'V'L_1(V')} + \overline{V'U'L_1(V')} + \overline{V'U'L_1(V')}], \end{aligned} \quad (11c)$$

where, as usually:

$$\begin{aligned} L_j = & \frac{\partial(\dots)}{\partial \theta} - (-1)^j \frac{i}{\sin \theta} \frac{\partial(\dots)}{\partial \lambda} + b_j \operatorname{ctg} \theta(\dots), \\ & b_j=1, j=1,4; b_j=-1, j=2,3; b_j=0, j=5,6. \end{aligned}$$

The simplified modelling (see for example, [2]) supposes remaining only two operators, say, in the equation (11c):

$$\frac{\partial \overline{V'U'}}{\partial t} = \frac{i}{a} \overline{V'L_6(\Phi')}, \quad (12)$$

expressing  $\Phi'$  through  $\varphi$  complex potential of the velocity  $f$ , and the velocity components  $V'$  - in terms of functions  $\psi$  of the same velocity potential. We suppose that this procedure should be replaced by more consistent one that provides an advanced level of a theory.

Naturally, the equations for tensor of the turbulent tensions:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \overline{u'_i u'_j}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\overline{u_k \cdot u'_i u'_j} + \overline{u'_i u'_j u_k}) + \frac{\partial \overline{p' u'_i}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{p' u'_j}}{\partial x_i} = \\ = -\overline{u'_i u'_k} \frac{\partial \overline{u_j}}{\partial x} - \overline{u'_j u'_k} \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x} + p' \left( \frac{\partial u'_i}{\partial x} + \frac{\partial u'_j}{\partial x} \right). \end{aligned} \quad (13)$$

The important parameter of the turbulent processes is the kinetic energy of turbulent vortices  $b^2 = \overline{u'_k u'_k}$ , which can be found from the equation (with physical explanations of any term):

$$\begin{aligned} \frac{\partial b^2}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\overline{u'_k u'_k u'_j} + 2\overline{u'_k p'}) = & -2\overline{u'_k u'_i} \frac{\partial u_i}{\partial x_k} - 2 \frac{g}{\theta_0} \overline{w' \theta'} \\ \text{Advection} & \quad \text{Turbulent diffusion} & \quad \text{Effect of forces of tension} & \quad \text{Interaction of the Reynolds tension and averaged motion} & \quad \text{Generation for account for swimming forces} \end{aligned} \quad (14)$$

Here  $g$  is the magnitude of the acceleration vector due to the planet's gravity,  $\theta_0$  is the equilibrium potential temperature,  $\theta', p'$  are departures from equilibrium values. The physical content of any term is presented in Eq. (14).

Velocity's correlates are determined as follows [2]:

$$\begin{aligned} \overline{u'_i u'_j u'_k} = & -b\lambda_1 \left( \frac{\partial \overline{u'_i u'_j}}{\partial x_k} + \frac{\partial \overline{u'_i u'_k}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{u'_j u'_k}}{\partial x_i} \right), \\ \overline{u'_i u'_j \theta'} = & -b\lambda_2 \left( \frac{\partial \overline{u'_i \theta'}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{u'_j \theta'}}{\partial x_k} \right), \\ \overline{u'_i \theta'^2} = & -b\lambda_3 \left( \frac{\partial \overline{\theta'^2}}{\partial x_i} \right); \end{aligned}$$

$$p' \frac{\partial \theta'}{\partial x_i} = -\frac{b}{3l_1} \overline{u'_i \theta'} - \frac{1}{3} \sigma_{i3} \frac{g}{\theta_0} \overline{\theta'^2}, \quad (15)$$

$$p' \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) = -\frac{b}{3l_1} \left( \overline{u_i u_j} - \frac{1}{3} \sigma_{ij} b^2 \right) + cb^2 \left( \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{u_j}}{\partial x_i} \right).$$

Here  $c, l_1, \lambda_i$  are constants which define the scales of turbulent vortices and measure of their influence on the averaged motion and atmosphere turbulence anisotropy. Components of tensor of the turbulent tensions are ( $v_{l,n}$  - spectral modes of velocity field) [2]:

$$\begin{aligned} \hat{V}^2 = & \sum_{k=1}^{\infty} \sum_{s=-k}^k V_{k,s} T_{1,s}^k \left( \sum_{q=1}^{\infty} \sum_{j=-q}^q V_{q,j} T_{1,j}^q \right) = \\ = & \sum_{k=1}^{\infty} \sum_{s=-k}^k \sum_{q=1}^{\infty} \sum_{j=-q}^q V_{k,s} V_{q,j} \times \\ & \times \sum_{\nu=|k-q|}^{k+q} \sigma_{1,1,2}^{k,q,\nu} \sigma_{s,j,s+j}^{k,q,\nu} T_{2,s+j}^{\nu} = \overline{v'_1 v'_1} = b^2. \end{aligned} \quad (16)$$

An effective approach to determination of the atmospheric flow velocity can be given by method of a plane complex field theory in a full analogy with the known Karman vortices chain model:

$$\begin{aligned} v_x - iv_y = & \frac{df}{d\zeta} = \frac{\Gamma}{2\pi i} \left[ \frac{1}{\zeta - \zeta_0} + \sum_{k=1}^{\infty} \left( \frac{1}{\zeta - \zeta_0 - kl} + \frac{1}{\zeta - \zeta_0 + kl} \right) \right] + \\ & + \frac{d}{d\zeta} \left[ \sum_{k=1}^n \Gamma_k \ln(\zeta - b_k) \right]. \end{aligned} \quad (17)$$

Here  $\Gamma_k$  - circulation on the vortex elements, created by clouds,  $b_k$  - co-ordinates of these elements,  $\Gamma$  - circulation on the standard Karman chain vortices of,  $l$  - distance between standard vortices of the Karman chain,  $\zeta$  - co-ordinate of



the convective perturbations line (or front divider) centre,  $\zeta_0 - kl$  – co-ordinate of beginning of the convective perturbation line,  $\zeta_0 + kl$  – co-ordinate of end of this line. Equating the velocity components determined in the global circulation model and model (6), we find the spectral matching between the wave numbers that define the functional elements in the Fourier-Bessel series with the source element of a plane field theory.

It is also worth to remind that any vector field  $u$  can be separated into rotational and divergent parts, i.e.,

$$u = \nabla \psi + u_f \quad (18)$$

(the Helmholtz's theorem). If the vector field is a horizontal wind, one can define a current function  $\psi$ , to express the rotational part, and a velocity potential  $f$ , to express the divergent part. Namely these parameters are of a great interest in applied analysis of an global atmospheric ventilation. Below we present the results of test computing the atmospheric ventilation for a few synoptic situations in the Pacific ocean region. All calculations are performed with using of the "GeoMath-RadEnv" and "Quantum" PC codes [1-5,11-16].

### 3. Some numerical results and conclusions

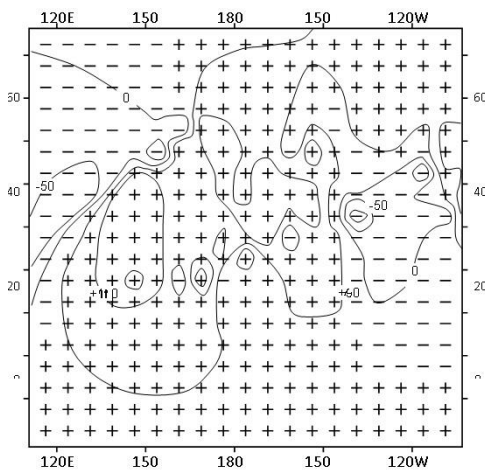
Regarding the Fukushima Nuclear power plant accidents, it is well-known [8] that on March 11th 2011, an earthquake of magnitude 9.0 occurred off northeastern Japan, causing a tsunami and damaging the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FNPP1). As a result, radioactive products were released in the atmosphere and other geospheres (ocean, soils etc). A summary of the meteorological conditions during the critical phases of the atmospheric emissions is given in the WMOTT report (WMO, 2013) and by several other researchers. According to [8], from March 9th to 12th a weak low pressure trough over eastern Japan caused light rain to be observed and then a high pressure system moved eastward along the south coast of the main island of Japan from the 12th through the 13<sup>th</sup>; from March 14th to 15<sup>th</sup> another weak low pressure trough moved eastward off the southern coast of the main island then moved toward the northeast while developing rapidly after the 15th. In particular, rain was observed in the Fukushima prefecture during

the night from 1700 JST 1 March 15 to 0400 JST March 16 (Kinoshita et al., 2011), a time corresponding with significant emissions. High pressure dominated on March 18th and 19th and the winds were generally from the west. A low pressure system passed over the main island from March 20th to the 22nd causing moderate rain near Tokyo. It is well known that the deposition, dispersion of the of radionuclides in the atmosphere mainly depended upon many factors such as the source term characteristics including source magnitude and source height, meteorological condition, atmospheric circulation on different temporal and spatial time-scales, the physical and physicochemical property of specific radionuclide. Regarding the Fukushima nuclear plant accidents, the behavior of Fukushima-derived radionuclides is attributed to the large scale atmospheric low-frequency processes (circulation) as according to Refs. [2,5-7] the Fukushima accidents radionuclides were detected in the northern hemisphere and southern hemisphere within 20 day and one month after the accidents [8].

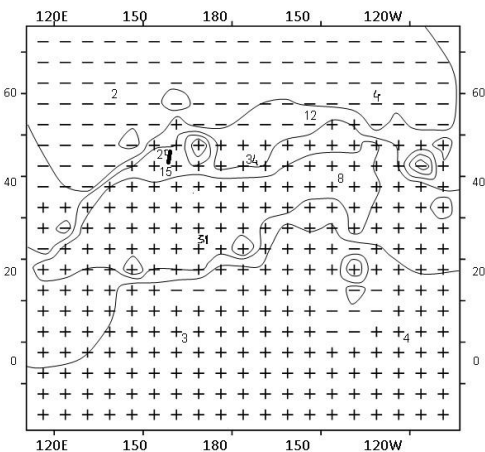
Further let us present some of our modelling results taking into account that as we have very limited space available for this paper. All necessary input data parameters are taken from Refs. [1-4-7]. Below as illustration, we present the results of our numerical simulation and experiments and their analysis is given. Calculation of changes in the height of elevated tropospheric wave guide in the form of circulation, M1 (look Figure 1 and Ref. [2]) gave the average height of tropospheric waveguide according to the season within the 1500-2500 m; changes desired heights are in the range of 50-500 m. It is important for long-term forecasting only a sign of abnormality of heights of the radiowaveguide and not their numerical characteristics.

The negative anomalies are observed near the Asian and American continents, and positive anomaly - over the Pacific Ocean (Fig. 1). Figure 2 corresponds to wind flows presented an anomaly of the stream function, where the direction of the velocity vector corresponds to the positive values that were left of the stream (Figure 1b numbers marked velocity values in  $m \times c^{-1}$ ; the corresponding values of changes in the function of the current make - maximum value:  $\sim 20 \times 10^6 m^2 s^{-1}$ ,  $\sim 1.2 \times 10^6 m^2 s^{-1}$ ). Analysing results in Figures 1,2, one could see that a transfer of angular

momentum along the horizontal moisture transfer goes from east to west, which corresponds to a calculated scheme [9], with the main stream of the West account for the breadth of the Aleutian Islands, which also corresponds to the results by Oort et al [9]. Similar results are obtained in Refs. [2,9] for the shape of the M1, but for the cold half of the year. It has been found that the rise height of the raised radio waveguides is shifted to the north, with a maximum over Japan. This can be explained by the increase of the temperature contrast of “Pole - Equator” and the corresponding displacement of the Arctic and polar fronts. It is important to note that the results obtained here differ from the analogous results of the corresponding stationary theory and simplified non-stationary one on about 10-15%. This fact confirms that a real theory of the studied phenomena should be by non-stationary one.

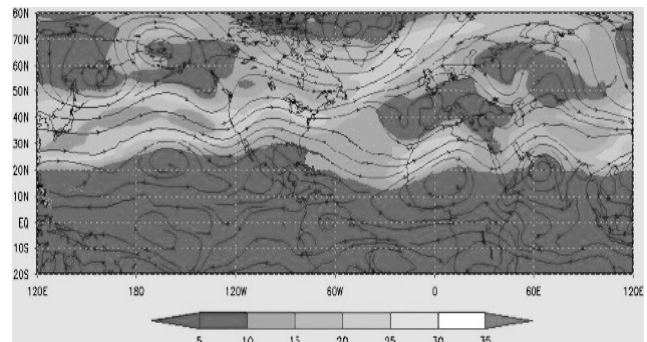


**Figure 1. Changing the height of the tropospheric radiowaveguide (see text).**



**Figure 2. The stream function for the situation depicted in the Figure 1 (see text).**

In Figure 3 we present our data on the average wind velocity (in knots) and the stream function (continuous lines) at 500 hPa, computed for the period from 11 March to 22 March, 2011. The analogous data for the wind velocity and the stream function have been presented in Ref. [8]. In whole there is quite complex picture of air flows and its predetermined that particles, which were released from Fukushima in different times and different altitudes above the earth surface had various trajectories in a full correspondence with data [8]. The stream has been influencing significantly the particles spreading at upper atmospheric levels (in absolute values the average wind velocity of the jet stream reached the values of about  $20 \text{ m} \times \text{s}^{-1}$ ). Analysis of the presented data show that the modelling results are in a physically reasonable agreement, though do not reflect in a full degree the observed picture. Nevertheless, the main atmospheric dynamical aspects in the studied period are reflected quite acceptably.



**Figure 3. The data on the average wind velocity and stream function (lines) at 500 hPa, computed for the period 11-22 March, 2011.**

In any case the modelling demonstrated the effectiveness of the approach in applying to studying the large scale atmospheric behaviour, provided by the energy and angular momentum balance, the transfer of atmospheric masses (moisture flow) with respect to the continuity of atmospheric circulation forms (telecommunication, front-genesis). The application of the method to the modelling of global atmospheric behaviour, the scattering of radionuclides after accidents at the nuclear power plant in Fukushima (Chernobyl) demonstrates its quite acceptable potential, which is confirmed by the preliminary, physically reasonable agreement between the predicted and

measured spatial distribution of radionuclides in the atmosphere, the direction and dynamics of the flows of air masses (particles). These data in details will be presented separately.

To conclude, we present the elements of a new advanced non-stationary theory of global mechanisms in atmospheric low-frequency processes, teleconnection effects to modelling global atmospheric behaviour, dispersion of radionuclides, provided by a radioactivity impact of the Fukushima (Chernobyl) nuclear accidents on the atmospheric environment. The approach is based on the energy, moment balance relationships for the global atmospheric low-frequency processes, atmospheric macroturbulence theory, link of tropospheric waveguides with atmospheric moisture circulation and, accordingly, with the shape of the atmospheric circulation over the position of the front sections of (atmospheric fronts as the main drives moisture). Atmospheric moisture cycle is associated with the typical low-frequency performance of the process as the balance of an energy, entropy and angular momentum. Last imbalance characterizes the rotation of the atmosphere together with the Earth, which may lead to the development of meridional processes with the implementation of the mass transfer of air and steam between tropical latitudes (with a linear velocity) and slowly rotating air masses of polar latitudes (in fact it is a slow process teleconnection). Imbalance on the energy and atmosphere angular momentum can not remain without consequences in the atmosphere due to the rather large forces involved in the desired dynamics. Naturally imbalance causes the effects of the singularity, i.e. sharp reaction of the atmosphere in an attempt to eliminate it. In any case, such a serious impact on the atmosphere, in principle, can largely cause change in the form of atmospheric circulation, which allows quickly to redress the energy and angular momentum imbalance organization sufficiently rapid moisture transport etc.

## References

- [1]. Glushkov A. V., Renorm-group and fractal approach to turbulence spectrum in planetary atmosphere system, "cosmic plasma – galactic cosmic rays"//Ukrainian Hydrometeorology Journal-2013. - № 12.- C. 25-30.
- [2]. Glushkov A. V., Ambrosov S. V., Entropy, energy and angular momentum balances and long-term forecasting a whether.-Odessa; OHMI: 1998.
- [3]. Glushkov A. V., Efimov V. A., Kivganov A. F., Modelling climate as a problem of interaction of the solitons triplete//Meteorology, Climatology and Hydrology.-1999.-Issue 38.-P. 3-8.
- [4]. Khokhlov V. N., Glushkov A. V., Tsenenko I. A. Atmospheric teleconnection patterns and eddy kinetic energy content: wavelet analysis//Nonlinear Processes in Geophysics.-2004.-Vol. 11.-P. 295–301.
- [5]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Ambrosov S. V., Bunyakova Yu. Ya., Mansarliysky V. F., The use of microsystems technology "Geomath" to modeling the balance of the angular momentum of the earth, atmospheric processes and parameters of radio waveguides: III. Nonstationary theory. //Sensor Electronics and Microsystems Technologies-2013.- Vol. 10, N1-P. 22-28.
- [6]. Glushkov A. V., Khokhlov V. N., Bunyakova Yu. Ya., Prepelitsa G. P., Svinarenko A. A., Tsenenko I. A. Sensing the nonlinear interaction between global teleconnection patterns: micro technology "Geomath"//Sensor Electr. and Microsyst. Techn.-2006.-Vol. 3, N1.-P. 64-70.
- [7]. Rusov V. D., Glushkov A. V., Vaschenko V. N., Myhalus O. T., Bondartchuk Yu. A. et al Galactic cosmic rays – clouds effect and bifurcation model of the earth global climate. Part 1. Theory// Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics (Elsevier).-2010.-Vol. 72.-P. 498-508.
- [8]. Povinec P. P., Gera M., Holý K. et al, Dispersion of Fukushima radionuclides in the global atmosphere and the ocean//Applied Rad. And Isotopes.-2013.-Vol81.-P. 383-392
- [9]. Peixoto J. P., Oort A. H. Physics of Climate – N.-Y. : AIP.-1992. –520p. ;
- [10]. Arakava A., Shubert W. H., Interaction of cumulus cloud ensemble with the large-scale environment//Journ. of Atm. Sci.-1974.-Vol. 31.-P. 674-701
- [11]. Glushkov A. V., Relativistic Quantum Theory. Quantum mechanics of Atomic Systems.-Odessa: Astroprint, 2008.- 700P.
- [12]. Glushkov A. V., Malinovskaya S. V., Chernyakova Yu. G., Svinarenko A. A. Cooperative laser-electron-nuclear processes: QED calculation of electron satellites spectra for multi-charged ion in laser field//Int. Journ. Quant.

Chem.- 2004.-Vol. 99, N6.-P. 889-893.

[13]. Glushkov A V, Ambrosov S V, Loboda A V, Chernyakova Yu, Svinarenko A A, Khetselius O Yu, QED calculation of the super-heavy elements ions: energy levels, radiative corrections, and hfs for different nuclear models// Nucl. Phys. A. : nucl. and hadr. Phys.-2004.-Vol. 734.-P. 21

[14]. Khetselius O. Yu., Relativistic perturbation theory calculation of the hyperfine structure parameters for some heavy-element isotopes//Int. Journ. of Quantum Chemistry.-2009.-Vol. 109, N14.-P. 3330-3335.

[15]. Glushkov A., Khetselius O., Lovett L., Electron- $\beta$ -nuclear spectroscopy of at-

oms and molecules and chemical environment effect on the  $\beta$ -decay parameters// Advances in the Theory of Atomic and Molecular Systems Dynamics, Spectroscopy, Clusters, and Nanostructures. (Springer).-2009.-Vol. 20.-P. 125-152.

[16]. Malinovskaya S., Glushkov A., Dubrovskaya Yu., Vitavetskaya L., Quantum calculation of cooperative muon-nuclear processes: discharge of metastable nuclei during negative muon capture// Recent Advances in the Theory of Chemical and Physical Systems (Springer).-2006.-Vol. 15.-P. 301-307.

Стаття надійшла до редакції 01.12.2017 р.

PACS: 42.68.Bz, 47.85.Np, 92.60.hk; UDC 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119603>

## NEW BALANCE APPROACH TO THE MODELING OF MACROTURBULENT ATMOSPHERIC DYNAMICS, SPATIAL DISTRIBUTION OF RADIONUCLIDES IN THE GLOBAL ATMOSPHERE, THEIR ENVIRONMENT IMPACT AFTER THE NUCLEAR ACCIDENT AT FUKUSHIMA NUCLEAR POWER PLANT

*A. V. Glushkov, A. V. Romanova, V. V. Buyadzhi, E. V. Bakunina, O. Yu. Khetselius, A. A. Svinarenko, A. S. Belodonov*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine

E-mail: [glushkovav@gmail.com](mailto:glushkovav@gmail.com)

### Summary

We present the elements of a new advanced non-stationary theory of global mechanisms in atmospheric low-frequency processes, teleconnection effects to modelling global atmospheric behaviour, dispersion of radionuclides, assessing radioactivity impact of the Fukushima (Chernobyl) nuclear accidents on the environment. The approach is based on the energy, moment balance relationships for the global atmospheric low-frequency processes, atmospheric macroturbulence theory, link of tropospheric waveguides with atmospheric moisture circulation and, accordingly, with the shape of the atmospheric circulation over the position of the front sections of (atmospheric fronts as the main drives moisture). Atmospheric moisture cycle is linked with such typical low-frequency process as the angular momentum balance; the latter accounts violation of the atmosphere rotating balance with the Earth, which may be under developing meridional processes with the implementation of the mass transfer of air and steam between the tropical latitudes (with a large linear velocity) and slowly rotating air masses of the polar latitudes (a process of slow teleconnection). The approach is realized and implemented into the new microsystem technology «GeoMath-RadEnv» and focused on the testing



and prediction of the air mass (particles) flows in the global atmospheric picture, determination of the new predictors for long-term and very long-forecasts of low-frequency atmospheric processes. PC experiments demonstrated the effectiveness of the approach in applying to modeling the balance of angular momentum, the transfer of atmospheric masses (moisture flow) with respect to the genesis of tropospheric waveguides, the continuity of atmospheric circulation forms (telecommunication, frontogenesis). The application of the method to the modeling of global atmospheric behavior, the scattering of radionuclides after accidents at the nuclear power plant in Fukushima (Chernobyl) demonstrates its effectiveness, which is confirmed by the physically reasonable agreement between the predicted and measured spatial distribution of radionuclides in the atmosphere, the direction and dynamics of the flows of air masses (particles).

**Keywords:** atmospheric low-frequency processes, energy and angular momentum balance, teleconnection, global atmospheric behaviour and dispersion of radionuclides, nuclear power plant accidents and radiation-environmental consequences

PACS: 42.68.Bz, 47.85.Np, 92.60.hk; УДК 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119603>

## НОВИЙ БАЛАНСОВИЙ ПІДХІД ДО МОДЕЛЮВАННЯ МАКРОТУРБУЛЕНТНОЇ АТМОСФЕРНОЇ ДИНАМІКИ, ПРОСТОРОВОГО РОЗПОДІЛУ РАДІОНУКЛІДІВ В ГЛОБАЛЬНІЙ АТМОСФЕРІ, ЇХ ВПЛИВУ НА НАВКОЛИШНЄ СЕРЕДОВИЩЕ ПІСЛЯ ЯДЕРНОЇ АВАРІЇ НА АЕС ФУКУСІМА

*А. В. Глушков, А. В. Романова, В. В. Буяджи, Е. В. Бакунина, О. Ю. Хецеліус, А. А. Свиначенко, А. С. Белодонов*

Одеський державний екологічний університет, Львівська 15, Одеса, 65016

E-mail: [glushkovav@gmail.com](mailto:glushkovav@gmail.com)

### Реферат

Ми представляємо елементи нового нестационарної теорії, що описує глобальні механізми в атмосферних низькочастотних процесах, ефекти телеконнекції та ін. для моделювання глобальної атмосферної поведінки, просторово-часового розподілу (дисперсії) радіонуклідів, оцінки радіоактивного впливу наслідків аварій на атомних електростанціях Фукусіма (Чорнобиль) на навколишнє середовище. Цей підхід заснований на використанні балансових співвідношень для енергії та кутового моменту в глобальних атмосферних низькочастотних процесах, теорії атмосферної макротурбулентності, атмосферного вологообороту у подальшому зв'язку з генезисом тропосферних радіохвильоводів і наступністю форм атмосферної циркуляції (телеконнекція, генезис фронтів), виявленні нових предикторів в середньо- і довго-строковому прогнозуванні динаміки низькочастотних атмосферних процесів. В рамках теорії виявлений зв'язок так званих тропосферних радіохвильоводів з атмосферним вологооборотом і відповідно з формою атмосферної циркуляції через положення фронтальних розділів (атмосферних фронтів як основних накопичувачів вологи). Атмосферний вологооборот пов'язаний з таким типово низькочастотним процесом як виконання балансу по енергії та кутовому моменту атмосфери. Останній характеризує порушення балансу обертання атмосфери разом із Землею, яке може



проходити при розвитку меридіональних процесів із здійсненням перенесення маси повітря і пара між тропічними широтами (з великою лінійною швидкістю) і повільно обертаються повітряними масами приполярних широт (процес повільної телеконнекції). Підхід реалізований у вигляді нової мікросистемної технології «GeoMath-RadEnv» і орієнтований на тестування і прогнозування потоків руху повітряних мас (частинок, радіонуклідів) в глобальній атмосферній картині, визначення нових предикторів для середньо- і довго-строкового прогнозування низькочастотних атмосферних процесів. ПК-експерименти продемонстрували ефективність підходу в застосуванні до моделювання балансу кутового моменту, переносу атмосферних мас (вологообороту) по відношенню до генезису тропосферних радіохвилеводів, наступності форм атмосферної циркуляції (телезв'язок, фронт-генезис). Застосування методу до моделювання глобальної атмосферного поведінки, розсіювання радіонуклідів після аварії на атомній електростанції Фукусіма (Чорнобиль) демонструє його ефективність, що підтверджується фізично розумним згодою між передбаченим і вимірним просторовим розподілом радіонуклідів в атмосфері, напрямком і динамікою потоків руху повітряних мас (часток).

**Ключові слова:** атмосферні низькочастотні процеси, баланс енергії та кутових моментів, телекомунікації, глобальна атмосферна поведінка та дисперсія радіонуклідів, аварії на атомних електростанціях та радіаційно-екологічні наслідки

# СЕНСОРИ ТА ІНФОРМАЦІЙНІ СИСТЕМИ

---

## SENSORS AND INFORMATION SYSTEMS

---

---

PACS 32.80Dz; UDC 621.311.25:621.039

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119604>

### **A NOVEL COMBINED CHAOS-GEOMETRIC AND VIBRATION BLIND SOURCE MONITORING APPROACH TO DAMAGE ANALYSIS AND DETECTION OF ENGINEERING STRUCTURES (NUCLEAR REACTORS) UNDER VARYING ENVIRONMENTAL, OPERATIONAL CONDITIONS AND EMERGENCY ACCIDENTS**

*V. V. Buyadzhi, A. V. Glushkov, M. Yu. Gurskaya, O. Yu. Khetselius, E. B. Ternovsky,  
A. A. Mashkantsev, S. V. Kirianov*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine  
E-mail: [buyadzhiyv@gmail.com](mailto:buyadzhiyv@gmail.com)

### **A NOVEL COMBINED CHAOS-GEOMETRIC AND VIBRATION BLIND SOURCE MONITORING APPROACH TO DAMAGE ANALYSIS AND DETECTION OF ENGINEERING STRUCTURES (NUCLEAR POWER PLANTS) UNDER VARYING ENVIRONMENTAL, OPERATIONAL CONDITIONS AND EMERGENCY ACCIDENTS**

*V. V. Buyadzhi, A. V. Glushkov, M. Yu. Gurskaya, O. Yu. Khetselius, E. B. Ternovsky,  
A. A. Mashkantsev, S. V. Kirianov*

**Abstract.** The paper is devoted to problem of analysis, identification and prediction of the presence of damages, which above a certain level may present a serious threat to the engineering (vibrating) structures such as different technical systems and devices, including nuclear reactors etc in result of the operational, environmental conditions, including the emergency accidents. For the first time we present and apply a novel computational approach to modelling, analysis (further prediction) of a chaotic behaviour of structural dynamic properties of the engineering structures, based on earlier developed chaos-geometric and vibration blind source monitoring approach. In the concrete realization the novel approach includes a combined group of blind source monitoring, non-linear analysis and chaos theory methods such as a correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc. As illustration we present the results of the numerical investigation of a chaotic elements in dynamical parameter time series for the experimental cantilever beam (the forcing and environmental conditions are imitated by the damaged structure, the variable temperature and availability of the pink-noise force). Using numerical time series analysis results, we list the

data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy etc and consider a construction of the engineering structures (including nuclear reactors) damage detection prediction model. Under an influence of the operational, environmental conditions, including the emergency incidents (accidents) during the operation of the nuclear reactor vessel it is more than probable development (growth) of damages (defects) that existed initially, as well as the emergence of new defects and their further development (growth). In this case technical application of vibration diagnostics technologies and further analysis within the presented approach could be very useful together with available probabilistic models for assessing the safety of nuclear reactors.

**Keywords:** damages of engineering (vibrating) structures, nuclear power plants, new mathematical models, new microsystem technology, chaos-geometric approach

### НОВИЙ КОМБІНОВАНИЙ ХАОС-ГЕОМЕТРИЧНИЙ ПІДХІД І BLIND SOURCE МОНІТОРИНГ ДО АНАЛІЗУ І ДЕТЕКТУВАННЯ УШКОДЖЕНЬ ІНЖЕНЕРНИХ СТРУКТУР (ЯДЕРНІ РЕАКТОРИ) ПРИ ЗМІНІ ЕКСПЛУАТАЦІЙНИХ УМОВ, УМОВ НАВКОЛИШНЬОГО СЕРЕДОВИЩА, АВАРІЙНИХ ІНЦИДЕНТІВ

*В. В. Буюджи, О. В. Глушков, М. Ю. Гурська, О. Ю. Хецеліус, Є. В. Терновський,  
О. А. Машканцев, С. В. Кір'янов*

**Анотація.** Стаття присвячена проблемі аналізу, ідентифікації та прогнозування наявності пошкоджень, які вище певного рівня можуть представляти серйозну загрозу для інженерних (вібраційних) структур, таких як різні технічні системи та пристрої, включаючи ядерні реактори і т.д., внаслідок зміни експлуатаційних, екологічних умов, аварійних інцидентів. Вперше ми представляємо і застосовуємо новий обчислювальний підхід до моделювання, аналізу (подальшого прогнозування) хаотичного поведінки структурно-динамічних властивостей інженерних структур на основі раніше розробленого нами хаосу-геометричного методу плюс blind source моніторинг. У конкретній реалізації новий підхід включає в себе об'єднану групу методів та алгоритмів нелінійного аналізу і теорії хаосу, таких як метод кореляційного інтеграла та середньої взаємної інформації, алгоритми помилкових найближчих сусідів та сурогатних даних, аналіз на основі показників Ляпунова та ентропії Колмогорова, моделі нелінійного прогнозування і т.і. В якості ілюстрації наведені результати чисельного дослідження хаотичних елементів в часових рядах динамічних параметрів для експериментального консольного пучка (вплив і умови навколишнього середовища імітуються ушкодженою структурою, змінною температурою і наявністю сили типу рожевого шуму). На основі аналізу чисельних часових рядів отримані дані про топологічні і динамічні інваріанти, а саме: кореляційну розмірність, розмірності вкладення, Каплана-Йорка, показники Ляпунова, ентропію Колмогорова і т.і., та розглянута конструкція моделі прогнозування і виявлення пошкоджень інженерних споруд, у т.ч., ядерних реакторів. Під впливом експлуатаційних, екологічних умов, у тому числі надзвичайних інцидентів (аварій) під час експлуатації корпусу ядерного реактора є більш, ніж імовірним розвиток (зростання) шкодувань (дефектів), що існували спочатку, а також виникнення нових дефектів та їх подальший розвиток (зростання). У цьому випадку технічне застосування вібраційно-діагностичних технологій та подальший аналіз в рамках розвинутого в роботі підходу можуть бути дуже корисними разом із існуючими імовірнісними моделями оцінки безпеки ядерних реакторів.

**Ключові слова:** пошкодження інженерних (вібраційних) споруд, атомні реактори, нові математичні моделі, нова мікросистемна технологія, хаос-геометричний підхід

## **НОВЫЙ КОМБИНИРОВАННЫЙ ХАОС-ГЕОМЕТРИЧЕСКИЙ ПОДХОД И BLIND SOURCE МОНИТОРИНГ К АНАЛИЗУ И ДЕТЕКТИРОВАНИЮ ПОВРЕЖДЕНИЙ ИНЖЕНЕРНЫХ СТРУКТУР (ЯДЕРНЫЕ РЕАКТОРЫ) ПРИ ИЗМЕНЕНИИ ЭКСПЛУАТАЦИОННЫХ УСЛОВИЙ, УСЛОВИЙ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ, АВАРИЙНЫХ ИНЦИДЕНТОВ**

*В. В. Буяджи, А. В. Глушков, М. Ю. Гурская, О. Ю. Хецелиус, Е. В. Терновский,  
А. А. Машиканцев, С. В. Кирьянов*

**Аннотация.** Статья посвящена проблеме анализа, идентификации и прогнозирования наличия повреждений, которые выше определенного уровня могут представлять серьезную угрозу для инженерных (вибрационных) структур, таких как различные технические системы и устройства, включая ядерные реакторы и т.д., вследствие изменения эксплуатационных, экологических условий, аварийных инцидентов. Впервые мы представляем и применяем новый вычислительный подход к моделированию, анализу (дальнейшему прогнозированию) хаотического поведения структурно-динамических свойств инженерных структур на основе ранее разработанного нами хаоса-геометрического метода плюс известный blind source мониторинг. В конкретной реализации новый подход включает в себя объединенную группу методов и алгоритмов нелинейного анализа и теории хаоса, таких как метод корреляционного интеграла и средней взаимной информации, алгоритмы ложных ближайших соседей и суррогатных данных, анализ на основе показателей Ляпунова и энтропии Колмогорова, модели нелинейного прогнозирования и т. д. В качестве иллюстрации приведены результаты численного исследования хаотических элементов в временных рядах динамических параметров для экспериментального консольного пучка (воздействие и условия окружающей среды имитируются поврежденной структурой, переменной температурой и наличием силы типа розового шума). На основе численного анализа временных рядов получены данные о топологических и динамических инвариантах, а именно: корреляционной размерности, размерностях вложения, Каплана-Йорка, показателях Ляпунова, энтропии Колмогорова и т.д., и рассмотрена конструкция модели прогнозирования и обнаружения повреждений инженерных сооружений, в т.ч., ядерных реакторов. Под влиянием эксплуатационных, экологических условий, в том числе чрезвычайных инцидентов (аварий) при эксплуатации корпуса ядерного реактора является более чем вероятным развитие (рост) возмещений (дефектов), существовавшие изначально, а также возникновение новых дефектов и их дальнейшее развитие (рост). В этом случае техническое применение вибрационно-диагностических технологий и последующий анализ в рамках развитого в работе подхода могут быть очень полезными вместе с использованием существующих вероятностных моделей оценки безопасности ядерных реакторов.

**Ключевые слова:** повреждения инженерных (вибрационных) сооружений, атомные реакторы, новые математические модели, новая микросистемная технология, хаос-геометрический подход

## 1. Introduction

In the last decade the problem of analysis, identification and further prediction of the presence of damages (cracks) in different engineering (vibrating) structures (such as different mechanical and hydrotechnical systems, devices, equipment, turbochargers, engines of hydroelectric stations, atomic reactors etc) because of the changing operational, environmental conditions, including the emergency accidents, attracts an increasing interest and has a great importance [1-4]. The standard way is using so called structural health monitoring (SHM) methods (see [4]) that have been intensively investigated over the last decades and allow the early identification and further localization of damages. Usually change of structural dynamic properties due to environmental, operational and other (earthquakes, tsunamis, emergency explosions etc) incidents results in the existence, location and size of damages. Really, the changing conditions such as temperature, moisture, pressure, mechanical actions etc may cause significant changes in their properties and result in the damage detection algorithms to false decisions. The useful information regarding the effects of environmental and operational conditions on a dynamics of different structures can be found in Ref. [4].

Let us remind that severe accidents in 1986 at the Chernobyl and in 2011 at 1 ÷ 4 Fukushima-Daiichi nuclear power plants and a series of incidents and accidents at a number of power units of other nuclear power plants in different countries of the world revealed a limited limit to the generally accepted approaches to the analysis and assessment of the safety of nuclear power plants in operation and projected. For example, all the Chernobyl and Fukushima-Daiichi emergency power units met the specified probabilistic safety criteria, but avoided a major accident (maximum level 7 on the IAEA scale) that had catastrophic environmental consequences, however, failed. As it has been noted in many Refs. (see, for example, [2] and Refs. therein), the nuclear accident at the Fukushima-Daiichi nuclear power plant was a consequence of the joint emergence of several external extreme off-project environmental (indeed, geophysical) impacts on nuclear power plants, accompanied by catastrophic violations of

technological processes: a complete loss of long-term energy supply to the main and auxiliary equipment of power units, gas vapor explosions in reactor plants, and others. However, in the generally accepted approaches (assessments) to the security analysis, based on the ranking (ranking) of the estimates of the probability of occurrence of emergency events, the contribution to relatively unlikely emergency events in the integral safety indicators is given insufficient attention. Violation of the normal operation of a nuclear reactor due to failure due to unlikely emergency environmental or operational conditions of any element of the nuclear reactor may change the values of temperature, velocity and other parameters of the coolant in comparison with the values corresponding stable normal operating conditions of the nuclear reactor.

In the light of saying, a great interest attracts carrying out an effective consistent approaches to modelling, analysis (further prediction) of a chaotic behaviour of structural dynamic properties of the engineering structures. It is worth to note that an especial interest attracts the point-wise summation of similar Wavelet Transform Modulus Maxima decay lines, which has been used in [4] to detect the damages under varying environmental and operational conditions. This damage detection methodology has been applied to investigation of both a simulated 3 degrees-of-freedom system and an experimental cantilever beam, excited by white and pink noise forces. The master conclusion [4] is that that the SHM methodology applied is capable of identifying the presence of damage in a time range under varying environmental and/or operational conditions. This is fully confirmed by an effective application of the methodology to experimental data, to verify its ability in identifying the presence of damage in real-life operations. Sadhu and Hazre [4] presented a novel damage detection algorithm based on blind source separation in conjunction with time-series analysis. Blind source separation (BSS), is a powerful signal processing tool that is used to identify the modal responses and mode shapes of a vibrating structure using only the knowledge of responses. In the proposed method [4], BSS is first employed to estimate the modal response using the vibration measurements. Time-series analysis is then performed



to characterize the mono-component modal responses and successively the resulting time-series models are utilized for one-step ahead prediction of the modal response. From experimental viewpoint, especially valuable are now methods of nondestructive testing, in particular, vibro-diagnostics (see details in Refs. [1-4]). Each class and even each type of equipment is characterized by its own separate sets of criteria for assessing the vibration state, depending on the conditions of assembly, installation, operation, etc. A certain one-sidedness of the vibrodiagnostic methods, based primarily on the primary Fourier transform of the signal, does not allow for an integrated approach to solving the problem. The wide spread and more advanced methodologies such as wavelet analysis, subspace-based identification methodologies, regression analysis, singular value decomposition, auto-associative neural network and factor analysis under situation, dynamical systems and chaos theory methods [5-10] etc have been discussed.

In this paper for the first time we present and apply a novel computational approach to modelling, analysis (further prediction) of a chaotic behaviour of structural dynamic properties of the engineering structures, based on earlier developed chaos-geometric and vibration blind source monitoring approach. In the concrete realization the novel approach includes a combined group of blind source monitoring, non-linear analysis and chaos theory methods such as a correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc [5-11]. As illustration we present the results of the numerical investigation of a chaotic elements in dynamical parameter time series for the experimental cantilever beam (the forcing and environmental conditions are imitated by the damaged structure, the variable temperature and availability of the pink-noise force). Using numerical time series analysis results, we list the data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy etc and consider a construction of the engineering structures (including nuclear reactors) damage detection

prediction model. All calculations are performed with using "Geomath", "Superatom" and "Quantum Chaos" computational codes [11-16]. The possibilities of using the proposed approach under studying the nuclear reactors security are in brief considered.

## 2. Chaos-geometric and blind source separation monitoring algorithms to damage analysis and detection for engineering structures

The blind source separation (BSS) methods have emerged as a powerful class of signal processing methods capable of monitoring the health of a large class of engineering structures. Many concrete applied results (for example, see [4] and Refs. there in). reveal the potential of using the principle of BSS for a wide range of structural engineering problems. Originally proposed for a few class of problems involving broadband excitations, static mixtures, and relatively large sensor densities, BSS extensions to under-determined case, nonstationary environment, decentralized sensing network, and for convolutive mixing have also been reported in recent studies by many authors. Note that in ref. [4] it has been in details presented a novel time-series analysis based BSS method and applied to tackle damage detection in civil structures which is commonly encountered as a major structural health monitoring problem. Our idea is in combination of the BSS algorithm by Sadhu-Hazra and chaos-geometric (chaos-dynamical) approach, which has been earlier developed by us. The key elements of the chaos-geometric computational approach to studying the complex non-linear systems time series with elements of a chaos are presented in Refs. [5-11], so below we are limited only by the key ideas.

Let us note that for the first time idea to apply the approach [7-11] to damage detection in the engineering structure has been proposed in [7]. In our case the displacement quantity is described by some scalar series  $s(n)=s(t_0 + n\Delta t) = s(n)$ , where  $t_0$  is a start time,  $\Delta t$  is time step, and  $n$  is number of the values measurements (in whole we considered a series of consisting of a total of a  $\sim 10^4$  data points). The main task is to reconstruct phase space using as well as possible informa-

tion contained in  $s(n)$ . To do it, the method of using time-delay coordinates by Packard et al [5] is used. The direct using lagged variables  $s(n+\tau)$  (here  $\tau$  is some integer to be defined) results in a coordinate system where a structure of orbits in phase space can be captured. A set of time lags is used to create a vector in  $d$  dimensions,

$$\mathbf{y}(n) = [s(n), s(n + \tau), s(n + 2\tau), \dots, s(n + (d-1)\tau)], \quad (1)$$

the required coordinates are provided. Here the dimension  $d$  is the embedding dimension,  $d_E$ .

To determine the proper time lag at the beginning one should use the known method of the linear autocorrelation function  $C_L(\delta)$  and look for that time lag where  $C_L(\delta)$  first passes through 0. The alternative additional approach is provided by the method of average mutual information as an approach with so called nonlinear concept of independence.

According to Takens and Mañé (see, for example [5]), any time lag will be acceptable is not terribly useful for extracting physics from data. If  $\tau$  is chosen too small, then the coordinates  $s(n + j\tau)$  and  $s(n + (j + 1)\tau)$  are so close to each other in numerical value that they cannot be distinguished from each other. Similarly, if  $\tau$  is too large, then  $s(n + j\tau)$  and  $s(n + (j + 1)\tau)$  are completely independent of each other in a statistical sense. Also, if  $\tau$  is too small or too large, then the correlation dimension of attractor can be under- or overestimated respectively. It is therefore necessary to choose some intermediate (and more appropriate) position between above cases. The first wide spread approach is to compute the linear autocorrelation function

$$C_L(\delta) = \frac{\frac{1}{N} \sum_{m=1}^N [s(m+\delta) - \bar{s}][s(m) - \bar{s}]}{\frac{1}{N} \sum_{m=1}^N [s(m) - \bar{s}]^2}, \quad (2)$$

where

$$\bar{s} = \frac{1}{N} \sum_{m=1}^N s(m)$$

and to look for that time lag where  $C_L(\delta)$  first passes through zero. This gives a good hint of choice for  $\tau$  at that  $s(n + j\tau)$  and  $s(n + (j + 1)\tau)$  are linearly independent. However, a linear independence of two variables does not mean that these variables are nonlinearly independent since

a nonlinear relationship can differs from linear one. It is therefore preferably to use an approach with a nonlinear concept of independence, e.g. the average mutual information. Briefly, the concept of mutual information can be described as follows. Let there are two systems,  $A$  and  $B$ , with measurements  $a_i$  and  $b_k$ . The amount one learns in bits about a measurement of  $a_i$  from a measurement of  $b_k$  is given by the arguments of information theory as

$$I_{AB}(a_i, b_k) = \log_2 \left( \frac{P_{AB}(a_i, b_k)}{P_A(a_i)P_B(b_k)} \right), \quad (3)$$

where the probability of observing  $a$  out of the set of all  $A$  is  $P_A(a_i)$ , and the probability of finding  $b$  in a measurement  $B$  is  $P_B(b_k)$ , and the joint probability of the measurement of  $a$  and  $b$  is  $P_{AB}(a_i, b_k)$ . The mutual information  $I$  of two measurements  $a_i$  and  $b_k$  is symmetric and non-negative, and equals to zero if only the systems are independent. The average mutual information between any value  $a_i$  from system  $A$  and  $b_k$  from  $B$  is the average over all possible measurements of  $I_{AB}(a_i, b_k)$ ,

$$I_{AB}(\tau) = \sum_{a_i, b_k} P_{AB}(a_i, b_k) I_{AB}(a_i, b_k). \quad (4)$$

To place this definition to a context of observations from a certain physical system, let us think of the sets of measurements  $s(n)$  as the  $A$  and of the measurements a time lag  $\tau$  later,  $s(n + \tau)$ , as  $B$  set. The average mutual information between observations at  $n$  and  $n + \tau$  is then

$$I_{AB}(\tau) = \sum_{a_i, b_k} P_{AB}(a_i, b_k) I_{AB}(a_i, b_k). \quad (5)$$

Now we have to decide what property of  $I(\tau)$  we should select, in order to establish which among the various values of  $\tau$  we should use in making the data vectors  $\mathbf{y}(n)$ . It is worth to remind that the autocorrelation coefficient failed to achieve zero, i.e. the autocorrelation function analysis not provides us with any value of  $\tau$ . Such an analysis can be certainly extended to values exceeding 1000, but it is known that an attractor cannot be adequately reconstructed for very large values of  $\tau$ . The mutual information function usually exhibits an initial rapid decay (up to a lag time of about 10) followed more slow decrease before attaining near-saturation at the first minimum. In fact the autocorrelation function and

average mutual information can be considered as analogues of the linear redundancy and general redundancy, respectively, which was applied in the test for nonlinearity.

The further next step is to determine the embedding dimension,  $d_E$ , and correspondingly to reconstruct a Euclidean space  $R^d$  large enough so that the set of points  $d_A$  can be unfolded without ambiguity. The dimension,  $d_E$ , must be greater, or at least equal, than a dimension of attractor,  $d_A$ , i.e.  $d_E > d_A$ . To reconstruct the attractor dimension (see details in [5-9]) and to study the signatures of chaos in a time series, one could use different methods, however, the most effective ones are represented by the correlation integral algorithm of Grassberger and Procaccia and the false nearest neighbours by Kennel et al (see details in [7]).

The principal question of studying any complex system with a non-linear chaotic dynamics is to build the corresponding prediction model and define how predictable is a chaotic system. At preliminary step it means the obligatory determination of such characteristics as the Kolmogorov entropy (and correspondingly the predictability measure as it can be estimated by the Kolmogorov entropy), the Lyapunov's exponents, by the Kaplan and Yorke dimension.

Let us remind that according to the standard definition, the Lyapunov's exponents are usually defined as asymptotic average rates and they are related to the eigenvalues of the linearized dynamics across the attractor. Naturally, the knowledge of the whole spectrum of Lyapunov's exponents allows to determine other important invariants such as the Kolmogorov entropy and the attractor's dimension. The Kolmogorov entropy is determined by the sum of the positive Lyapunov exponents. The estimate of the dimension of the attractor is provided by the Kaplan and Yorke conjecture

$$d_L = j + \sum_{i=1}^j \lambda_i / |\lambda_{j+1}|, \quad (6)$$

where  $j$  is such that  $\sum_{i=1}^j \lambda_i > 0$  and  $\sum_{i=1}^{j+1} \lambda_i < 0$ , and the Lyapunov exponents are taken in descending order. The fundamental ideas for building the possible prediction models for non-linear systems with a chaotic elements can be found in Refs. [7-10], however, so below we are limited only by

key ideas and concrete computing the topological and dynamical invariants for the engineering system. The key idea of the prediction model can be based on using the traditional concept of a compact geometric attractor in which evolves the measurement data, plus the implementation of neural network algorithms [7-10]. The existing so far in the theory of chaos prediction models are based on the concept of an attractor.

The meaning of the concept is in fact a study of the evolution of the attractor in the phase space of the system and, in a sense, modelling («guessing») time-variable evolution. In the phase space of the system an orbit continuously rolled on itself due to the action of dissipative forces and the nonlinear part of the dynamics, so it is possible to stay in the neighborhood of any point of the orbit  $y(n)$  other points of the orbit  $y^r(n)$ ,  $r = 1, 2, \dots, N_B$ , which come in the neighborhood  $y(n)$  in a completely different times than  $n$ . Of course, then one could try to build different types of interpolation functions that take into account all the neighborhoods of the phase space and at the same time explain how the neighborhood evolve from  $y(n)$  to a whole family of points about  $y(n+1)$ . Use of the information about the phase space in the simulation of the evolution of some engineering structure in time can be regarded as a fundamental element in the simulation of random processes. Considering the neural network (in this case, the appropriate term «engineering structure» neural network) with a certain number of neurons, as usual, we can introduce the operators  $S_{ij}$  synaptic neuron to neuron  $u_i u_j$ , while the corresponding synaptic matrix is reduced to a numerical matrix strength of synaptic connections:  $W = ||w_{ij}||$ . The operator is described by the standard activation neuro-equation determining the evolution of a neural network in time:

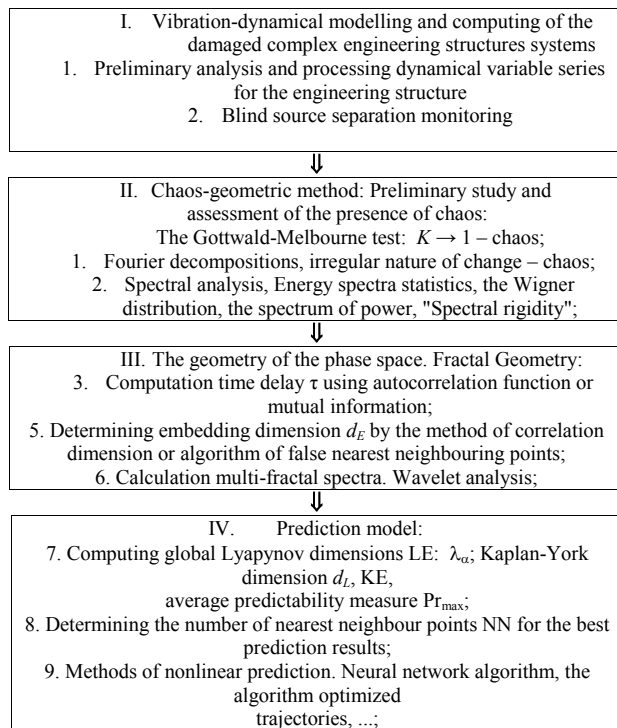
$$s_i' = \text{sign}(\sum_{j=1}^N w_{ij} s_j - \theta_i). \quad (7)$$

From the point of view of the theory of chaotic dynamical systems, the state of the neuron (the chaos-geometric interpretation of the forces of synaptic interactions, etc.) can be represented by currents in the phase space of the system and its topological structure is obviously determined by the number and position of attractors.

These idea have been used in order to make more advanced the wide spread prediction model which is based on the constructing a parameterized nonlinear function  $F(x, a)$ , which transform  $y(n)$  to  $y(n+1) = F(y(n), a)$ , and then using different criteria for determining the parameters  $a$ . The most common form of the local model is very simple (more complicated and exact versions can be used [7]):

$$s'_i = \text{sign}\left(\sum_{j=1}^N w_{ij}s_j - \theta_i\right), \quad (8)$$

where  $\Delta n$  - the time period for which forecasting should be done.



**Figure 1. Flowchart of the proposed combined vibration-dynamical and chaos-geometric approach to nonlinear analysis and prediction of chaotic dynamics, damage detection and locations of the complex engineering structures.**

The coefficients  $a_j^{(k)}$ , may be determined by a least-squares procedure, involving only points  $s(k)$  within a small neighbourhood around the reference point. Thus, the coefficients will vary throughout phase space. The fit procedure amounts to solving  $(d_A + 1)$  linear equations for the  $(d_A + 1)$  unknowns. One could create a model of the process occurring in the neighborhood, at the neighborhood and by combining together

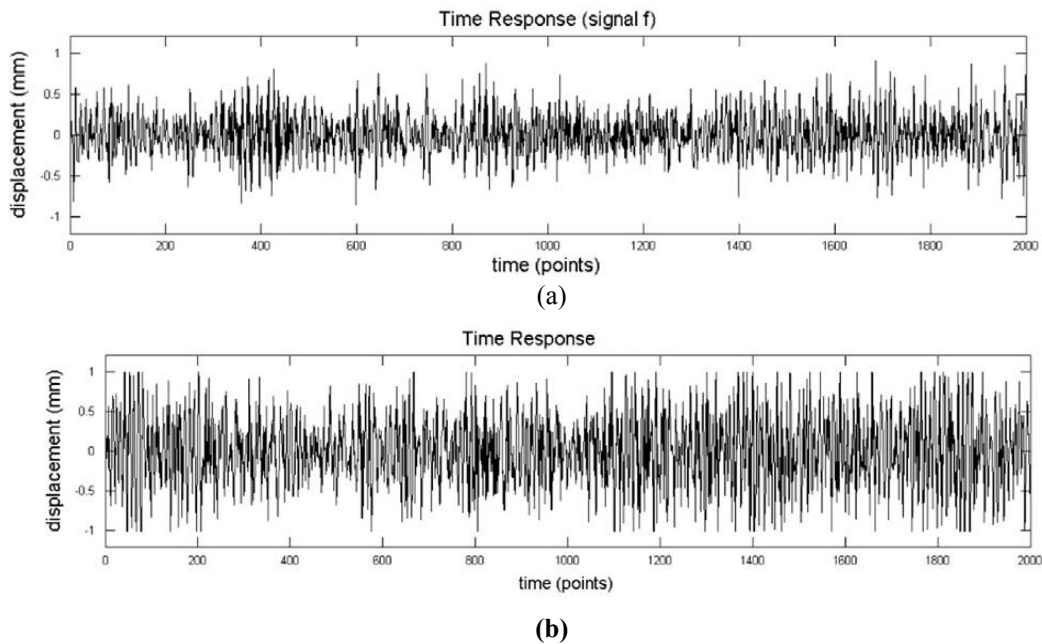
these local models to construct a global nonlinear model that describes most of the structure of the attractor. In order to get more advanced prediction of chaotic dynamics one may apply the polynomial model with using the neural network algorithm [7-11]. Obviously, such a model will do for any engineering structure, including nuclear reactors and others (under availability of the corresponding vibration monitoring data).

In Figure 1 we present the flowchart of the combined vibration-dynamical and chaos-geometric approach to nonlinear analysis and prediction of chaotic dynamics, damage detection and locations of the complex engineering structures ([7-10]).

### 3. The numerical results and conclusions

As illustration we present the results of the numerical investigation of a chaotic elements in dynamical parameter time series for the experimental cantilever beam (the forcing and environmental conditions are imitated by the damaged structure, the variable temperature and availability of the pink-noise force) [4]. As the initial data we use the data of the corresponding cantilever beam (excited by white and pink noise forces) time domain response series [4]. The detailed description of the experimental setup of a cantilever beam is presented in Ref. [4]. Here we only note that it consists of steel having the following dimensions: length 592 mm, width 30 mm, and thickness 1.5 mm, a density of  $7.87 \times 10^{-6}$  kg/mm<sup>3</sup>, Young modulus of  $200 \times 10^6$  mN/mm<sup>2</sup>, and second moment of area of 8.44 mm<sup>4</sup>. The electrodynamic shaker was used to excite the cantilever beam and it was connected to the beam via a stringer rod to minimize the interaction between the shaker and the structure. Figure 2 shows the the typical experimental cantilever beam time domain response series under the definite environmental and forcing conditions (the series is related to the case of the damaged structure, the variable temperature and availability of the pink-noise force). Other situations are analyzed in Ref.[4].





**Figure 2. The experimental cantilever beam time domain response series for the case: (a) damaged structure, constant temperature and availability of the pink-noise force; (b) damaged structure, variable temperature and availability of the pink-noise force (see text).**

In table 1 we list data on the time delay ( $\tau$ ), depending on the different values of the autocorrelation function ( $C_L$ ) and the first minimum of mutual information ( $I_{\min 1}$ ) for the studied time domain response series in a case of the damaged structure, the variable temperature and availability of the pink-noise force. In Table 1 we also list correlation exponents ( $d_2$ ) and embedding dimensions determined by false nearest neighbours method ( $d_N$ ) with percentage of false neighbours (in parentheses).

Table 1

**The values of the time delay (lag), depending on the different values of the autocorrelation function ( $C_L$ ) and the first minimum of mutual information ( $I_{\min 1}$ ), Correlation exponents ( $d_2$ ) and embedding dimensions determined by false nearest neighbours method ( $d_N$ ) with percentage of false neighbours (in parentheses) calculated for various time lags ( $\tau$ ) for the studied time series (see text)**

$C_L = 0$	$\tau=114$	$d_2$	$d_N$
$C_L = 0.1$	$\tau=68$	7.68	9 (9.1)
$C_L = 0.5$	$\tau=6$	5.45	6 (1.3)
$I_{\min 1}$	$\tau=9$	5.48	6 (1.3)

The Table 2 summarizes the results of the computational reconstruction of the attractors (the correlation dimension ( $d_2$ ), embedding dimension ( $d_E$ ), the first two Lyapunov's exponents ( $\lambda_1$  and  $\lambda_2$ ), the Kaplan-Yorke dimension ( $d_L$ ), as well as the Kolmogorov entropy ( $K_{entr}$ ), and average limit of predictability ( $Pr_{\max}$ ). Analysis of the obtained data shows that the correlation exponent  $d$  attains saturation with an increase in the embedding dimension, and the system is generally considered to exhibit chaotic elements. The saturation value of the correlation exponent is defined as the correlation dimension ( $d_2$ ) of the attractor. The similar data for a reconstruction of the attractor dimension have been obtained by using the alternative false nearest neighbouring points method (version [11]). The dimension of the attractor is defined as the embedding dimension, in which the number of false nearest neighbouring points was less than 3%.



Table 2

**Correlation dimension ( $d_2$ ), embedding dimension ( $d_E$ ), first two Lyapunov exponents ( $\lambda_1$  and  $\lambda_2$ ), Kaplan-Yorke dimension ( $d_L$ ), the Kolmogorov entropy ( $K_{entr}$ ), average limit of predictability ( $Pr_{max}$ )**

$d_2$	$d_E$	$\lambda_1$	$\lambda_2$	$d_L$	$K_{entr}$	$Pr_{max}$
5.45	6	0.0197	0.0061	3,98	0.026	39

The Kaplan-Yorke dimension is less than the embedding dimension that confirms the correct choice of the latter. The presence of the two positive  $\lambda_i$  suggests the conclusion above regarding presence of the chaotic elements.

Further let us give the qualitative consideration of the perspectives of application of the approach to studying the possible damages in the nuclear reactor vessels. It is well known (for example, look [9-11]), that the constructive steel of the nuclear reactor vessels in the initial state have a set of qualities that allow them to be considered as homogeneous and isotropic. The modulus of elasticity and the Poisson coefficient characterize the macroscopic properties of the material, that is, they take into account the influence of microdefects that are found in the investigated material. Under an influence of the operational, environmental conditions, including the emergency incidents (accidents) during the operation of the reactor vessel it is more than probable the development (growth) of damages (defects) that existed initially, as well as the emergence of new defects and their further development (growth). Naturally, during some time these processes of defect changes in the material lead to a significant change in its properties. For example, as it is in details considered in Ref. [10], the directed action of an operating load (for example, internal pressure) can lead to the fact that the material isotropic in the initial state acquires the properties of anisotropic. Moreover, an anisotropy, acquired as a result of defects in the material, in turn, has a noticeable effect on the thermal conductivity and stress-strain state. In a case of the emergency events such as earthquakes, tsunamis other incidents these processes discussed could accept very dangerous form. This fact necessitates the studying the laws of the influence of microdefects on the properties of structural materials of the nuclear reactor vessel, in more details, technical application of vibration diagnostics technologies and

further analysis within the presented approach. In our opinion such an approach could be very useful together with available probabilistic models for assessing the safety of nuclear reactors.

To conclude, we have considered a problem of analysis, identification and prediction of the presence of damages, which above a certain level may present a serious threat to the engineering (vibrating) structures such as different technical systems and devices, including nuclear reactors etc in result of the operational, environmental conditions, including the emergency accidents. Starting from earlier developed chaos-geometric and the known vibration blind source monitoring algorithms we presented a novel computational approach to modelling, analysis (further prediction) of a chaotic behaviour of structural dynamic properties of the engineering structures. In the concrete realization the novel approach includes a combined group of blind source monitoring, non-linear analysis and chaos theory methods such as a correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc. The structure, character and dynamical and topological parameters can be different from each other, which made it possible in the future to relate the invariants of real signals to the attractors of «elementary» signals and determine the nature of the defect. As a result of analysis of reconstructed attractors on the basis of real signals, a qualitative conclusion can be drawn about the presence and development of prevailing defects in a system and to predict how close the state of the system is to the critical one.

The results of the numerical investigation of a chaotic elements in dynamical parameter time series for the experimental cantilever beam (the forcing and environmental conditions are imitated by the damaged structure, the variable tem-

perature and availability of the pink-noise force) are presented as illustration. Using numerical time series analysis results, the data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy etc are presented. The possibilities of using the proposed approach under studying the nuclear reactors security is in brief considered.

## References

- [1]. Gubanov E.R., Glushkov A.V., Khetse-  
lius O.Yu., Bunyakova Yu.Ya., Buyadzi V.V.,  
Pavlenko E.P., New methods in analysis and  
project management of environmental activity:  
Electronic and radioactive waste.- Kharkiv: FOP.-  
2017.-120P.
- [2]. A.V. Glushkov, O.Yu. Khetselius, A.A.  
Svinarenko, N.G. Serbov, The sea and ocean 3D  
acoustic waveguide: rays dynamics and chaos  
phenomena, Journ. Acoustical Soc. of America.  
**123**(5), 3625 (2008).
- [3]. G.P. Prepelitsa, V.V. Buyadzi, V.B. Ter-  
novsky, Non-linear analysis of chaotic self-oscil-  
lations in backward-wave tube, Photoelectronics  
**22**, 103-107 (2013).
- [4]. Sadhu A., Hazra B., A novel damage  
detection algorithm using time-series analy-  
sis-based blind source separation//Shock and  
Vibration.-2013.-Vol.20.-P.423–438.
- [5]. N. Packard, J. Crutchfield, J. Farmer and  
R. Shaw, Geometry from a time series Phys.Rev.  
Lett. **45**, pp.712-716 (1988).
- [6]. F. Takens, Detecting strange attractors in  
turbulence, in: *Dynamical systems and turbu-  
lence*, ed by D. Rand and L. Young (Springer,  
1981), pp.366–381
- [7]. A.V. Glushkov, *Methods of a Chaos The-  
ory* (OSEN, Odessa, 2012).
- [8]. A.V. Glushkov, V.V. Buyadzi, A.S. Kva-  
sikova, A.V. Ignatenko, A.A. Kuznetsova, G.P.  
Prepelitsa and V.B. Ternovsky, Non-Linear Cha-  
otic Dynamics of Quantum Systems: Molecules  
in an Electromagnetic Field and Laser Systems,  
in: *Quantum Systems in Physics, Chemistry,  
and Biology*, ed. A.Tadger, R.Pavlov, J.Marui,  
E.Brändas, G.Delgado-Barrio, Vol 30 (Cham,  
Springer, 2017), pp. 169-180.
- [9]. A.V. Glushkov, O.Y. Khetselius, S.V.  
Brusentseva, P.A. Zaichko and V.B. Ternovsky,  
Studying interaction dynamics of chaotic systems  
within a non-linear prediction method: Applica-  
tion to neurophysiology, in: *Advances in Neural  
Networks, Fuzzy Systems and Artificial Intelli-  
gence, Series: Recent Advances in Computer En-  
gineering*, ed. J.Balicki, Vol 21 (Gdansk, WSEAS  
Pub., 2014), pp. 69-75.
- [10]. A.V. Glushkov, A.A. Svinarenko,  
V.V. Buyadzi, P.A. Zaichko and V.B. Ternovsky,  
Chaosgeometric attractor and quantum neural  
networks approach to simulation chaotic evolu-  
tionary dynamics during perception process, in:  
*Advances in Neural Networks, Fuzzy Systems and  
Artificial Intelligence, Series: Recent Advances  
in Computer Engineering*, ed. J.Balicki, Vol 21  
(Gdansk, WSEAS Pub., 2014), pp. 143-150.
- [11]. Glushkov A.V., Relativistic Quan-  
tum Theory. Quantum mechanics of Atomic  
Systems.-Odessa: Astroprint, 2008. - 700P.
- [12]. Glushkov A V, Ivanov L N, DC  
strong-field Stark effect: consistent quantum-me-  
chanical approach// J. Phys. B: At., Mol. and Opt.  
Phys.-1993.-Vol.26,N14.-P.L379 –386.
- [13]. A.V. Glushkov, O.Yu. Khetselius  
and S.V. Malinovskaya, Optics and spectroscopy  
of cooperative laser-electron nuclear processes  
in atomic and molecular systems - new trend in  
quantum optics, Europ.Phys.Journ. ST. **160**(1),  
195-204 (2008).
- [14]. A.V. Glushkov, O.Yu. Khetselius  
and S.V. Malinovskaya, Spectroscopy of coopera-  
tive laser–electron nuclear effects in multiatomic  
molecules, Molec. Phys. **106**, 1257-1260 (2008).
- [15]. A.V. Glushkov, S.V. Ambrosov,  
A.V. Loboda, E.P. Gurnitskaya and G.P. Pre-  
pelitsa, Consistent QED approach to calculation  
of electron-collision excitation cross sections  
and strengths: Ne-like ions, Int. J. Quant.Chem.  
**104**(4), 562–569 (2005).
- [16]. Glushkov A.V., Khetselius O.Yu.,  
Loboda A.V., Svinarenko A.A., QED approach  
to atoms in a laser field: Multi-photon reso-  
nances and above threshold ionization//Frontiers  
in Quantum Systems in Chemistry and Physics  
(Springer).-2008.-Vol.18.-P.543-560.

Стаття надійшла до редакції 01.12.2017 р.

PACS 32.80Dz; UDC 621.311.25:621.039

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119604>

## **A NOVEL COMBINED CHAOS-GEOMETRIC AND VIBRATION BLIND SOURCE MONITORING APPROACH TO DAMAGE ANALYSIS AND DETECTION OF ENGINEERING STRUCTURES (NUCLEAR REACTORS) UNDER VARYING ENVIRONMENTAL, OPERATIONAL CONDITIONS AND EMERGENCY ACCIDENTS**

*V. V. Buyadzhi, A. V. Glushkov, M. Yu. Gurskaya, O. Yu. Khetselius, E. B. Ternovsky,  
A. A. Mashkantsev, S. V. Kirianov*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine  
E-mail: [buyadzhiyv@gmail.com](mailto:buyadzhiyv@gmail.com)

### **Summary**

The paper is devoted to problem of analysis, identification and prediction of the presence of damages, which above a certain level may present a serious threat to the engineering (vibrating) structures such as different technical systems and devices, including nuclear reactors etc in result of the operational, environmental conditions, including the emergency accidents. For the first time we present and apply a novel computational approach to modelling, analysis (further prediction) of a chaotic behaviour of structural dynamic properties of the engineering structures, based on earlier developed chaos-geometric and vibration blind source monitoring approach. In the concrete realization the novel approach includes a combined group of blind source monitoring, non-linear analysis and chaos theory methods such as a correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc. As illustration we present the results of the numerical investigation of a chaotic elements in dynamical parameter time series for the experimental cantilever beam (the forcing and environmental conditions are imitated by the damaged structure, the variable temperature and availability of the pink-noise force). Using numerical time series analysis results, we list the data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy etc and consider a construction of the engineering structures (including nuclear reactors) damage detection prediction model. Under an influence of the operational, environmental conditions, including the emergency incidents (accidents) during the operation of the nuclear reactor vessel it is more than probable development (growth) of damages (defects) that existed initially, as well as the emergence of new defects and their further development (growth). In this case technical application of vibration diagnostics technologies and further analysis within the presented approach could be very useful together with available probabilistic models for assessing the safety of nuclear reactors.

**Keywords:** damages of engineering (vibrating) structures, nuclear power plants, new mathematical models, new microsystem technology, chaos-geometric approach

PACS 32.80Dz; УДК 621.311.25:621.039

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119604>

## **НОВИЙ КОМБІНОВАНИЙ ХАОС-ГЕОМЕТРИЧНИЙ ПІДХІД І МЕТОД МОНІТОРИНГУ BLIND SOURCE ДО АНАЛІЗУ І ДЕТЕКТУВАННЯ УШКОДЖЕНЬ ІНЖЕНЕРНИХ СТРУКТУР (ЯДЕРНІ РЕАКТОРИ) ПРИ ЗМІНІ ЕКСПЛУАТАЦІЙНИХ УМОВ, УМОВ НАВКОЛИШНЬОГО СЕРЕДОВИЩА, АВАРІЙНИХ ІНЦИДЕНТІВ**

*В. В. Буяджи, О. В. Глушков, М. Ю. Гурська, О. Ю. Хецеліус, Є. В. Терновський,  
О. А. Машканцев, С. В. Кір'янов*

Одеський державний екологічний університет, Львівська 15, Одеса, 65016  
E-mail: [buyadzhivv@gmail.com](mailto:buyadzhivv@gmail.com)

### **Реферат**

Стаття присвячена проблемі аналізу, ідентифікації та прогнозування наявності пошкоджень, які вище певного рівня можуть представляти серйозну загрозу для інженерних (вібраційних) структур, таких як різні технічні системи та пристрої, включаючи ядерні реактори і т.д., внаслідок зміни експлуатаційних, екологічних умов, аварійних інцидентів. Вперше ми представляємо і застосовуємо новий обчислювальний підхід до моделювання, аналізу (подальшого прогнозування) хаотичного поведінки структурно-динамічних властивостей інженерних структур на основі раніше розробленого нами хаосу-геометричного методу плюс відомий алгоритм моніторингу сліпих джерел. У конкретній реалізації новий підхід включає в себе об'єднану групу blind source моніторингу, нелінійний аналіз і методи теорії хаосу, такі як метод кореляційного інтеграла та середньої взаємної інформації, алгоритми помилкових найближчих сусідів та сурогатних даних, аналіз на основі показників Ляпунова та ентропії Колмогорова, моделі нелінійного прогнозування і т. д. в якості ілюстрації наведені результати чисельного дослідження хаотичних елементів в тимчасових рядах динамічних параметрів для експериментального консольного пучка (вплив і умови навколишнього середовища імітуються ушкодженою структурою, змінною температурою і наявністю сили типу рожевого шуму). На основі аналізу чисельних часових рядів отримані дані про топологічні і динамічні інваріанти, а саме: кореляційну розмірність, розмірності вкладення, Каплана-Йорка, показники Ляпунова, ентропію Колмогорова і т.і., і розглянута конструкція моделі прогнозування і виявлення пошкоджень інженерних споруд, у т.ч., ядерних реакторів. Під впливом експлуатаційних, екологічних умов, у тому числі надзвичайних інцидентів (аварій) під час експлуатації корпусу ядерного реактора є більш, ніж імовірним розвиток (зростання) шкодувань (дефектів), що існували спочатку, а також виникнення нових дефектів та їх подальший розвиток (зростання). У цьому випадку технічне застосування вібраційно-діагностичних технологій та подальший аналіз в рамках розвинутого в роботі підходу можуть бути дуже корисними разом із існуючими імовірнісними моделями для оцінки безпеки ядерних реакторів.

**Ключові слова:** пошкодження інженерних (вібраційних) споруд, атомні реактори, нові математичні моделі, нова мікросистемна технологія, хаос-геометричний підхід

# СЕНСОРИ ТА ІНФОРМАЦІЙНІ СИСТЕМИ

---

## SENSORS AND INFORMATION SYSTEMS

---

---

PACS 32.80Dz; UDC 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119607>

### **ANALYSIS OF THE BERYLLIUM-7 ACTIVITY CONCENTRATION DYNAMICS IN THE ATMOSPHERIC ENVIRONMENT TIME SERIES AFTER THE FUKUSHIMA DAIICHI NUCLEAR POWER PLANTS EMERGENCY**

*Yu. Ya. Bunyakova, V. B. Ternovsky, Yu. V. Dubrovskaya, A. V. Ignatenko, A. A. Svinarenko,  
L. A. Vitavetskaya*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine  
E-mail: [juliby13@gmail.com](mailto:juliby13@gmail.com)

### **ANALYSIS OF THE BERYLLIUM-7 ACTIVITY CONCENTRATION DYNAMICS IN THE ATMOSPHERIC ENVIRONMENT TIME SERIES AFTER THE FUKUSHIMA DAIICHI NUCLEAR POWER PLANTS EMERGENCY**

*Yu. Ya. Bunyakova, V. B. Ternovsky, Yu. V. Dubrovskaya, A. V. Ignatenko, A. A. Svinarenko,  
L. A. Vitavetskaya*

**Abstract.** We present the results of an analysis, modelling a temporal dynamics of the beryllium-7 (caesium-137) activation concentration in the atmospheric environment time series in Austria after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants emergency accident. As method of studying we use the complex of the earlier developed models and microsystem technologies which are based on an advanced non-linear analysis technique and modern chaos theory and dynamical systems and a chaos theory methods (Correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc). As the input data we use the data on the long-term time series and activity size distribution of beryllium-7 (caesium-137) in the atmospheric environment time series in Austria after the Fukushima Nuclear Power Plant. We have listed the data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents, Kolmogorov entropy etc and found an availability of the chaos elements in the corresponding Be-7



time series. Regarding the caesium-137, we could not get the analogous adequate conclusion for the corresponding time series.

**Keywords:** mathematical modelling, new microsystem technologies, radionuclide activation concentration, time series analysis and chaotic elements

### **АНАЛІЗ ДИНАМІКИ КОНЦЕНТРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДА BERYLLIUM-7 В АТМОСФЕРНОМУ СЕРЕДОВИЩІ НА ОСНОВІ АНАЛІЗУ ЧАСОВИХ РЯДОВ ПІСЛЯ АВАРІЙНОЇ СИТУАЦІЇ НА АТОМНІЙ ЕЛЕКТРОСТАНЦІЇ FUKUSHIMA DAIICHI**

*Ю. Я. Бунякова, В. Б. Терновський, Ю. В. Дубровська, Г. В. Ігнатенко, А. А. Свинаренко,  
Л. А. Вітаветська*

**Анотація.** Наводяться результати аналізу і моделювання часової динаміки концентрації радіонуклідів берилій-7 (цезій-137) в атмосферному середовищі в Австрії на основі відповідного аналізу часових рядів після аварії на атомній електростанції Fukushima Daiichi. В якості методу вивчення використовується комплекс раніше розроблених моделей і мікросистемна технологія, які засновані на використанні методів нелінійного аналізу, теорії хаосу і динамічних систем, таких як метод кореляційного інтеграла і середньої взаємної інформації, алгоритми сурогатних даних і помилкових найближчих сусідів, аналіз на основі показників Ляпунова і ентропії Колмогорова, моделі нелінійного прогнозування і т. д. .. В якості вхідних даних використані дані за довгостроковими часовими рядами і розподілу ра змери активності берилію-7 в атмосферному середовищі в Австрії після аварії на атомній електростанції Fukushima Daiichi. Представлені дані про топологічні і динамічні інваріанти, а саме: кореляційну розмірність, розмірності вкладення та Каплана-Йорка, показники Ляпунова, ентропію Колмогорова та ін. і виявлені елементи хаосу в відповідних часових рядах для берилію-7. Відносно цезію-137, отримати аналогічний адекватний висновок не вдалося.

**Ключові слова:** математичне моделювання, нові мікросистемні технології, концентрація радіонуклідів, аналіз часових рядів і наявність хаотичних елементів

### **АНАЛИЗ ДИНАМИКИ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДИОНУКЛИДА BERYLLIUM-7 В АТМОСФЕРНОЙ СРЕДЕ НА ОСНОВЕ АНАЛИЗА ВРЕМЕННЫХ РЯДОВ ПОСЛЕ АВАРИЙНОЙ СИТУАЦИИ НА АТОМНОЙ ЭЛЕКТРОСТАНЦИИ FUKUSHIMA DAIICHI**

*Ю. Я. Бунякова, В. Б. Терновский, Ю. В. Дубровская, А. В. Игнатенко, А. А. Свинаренко,  
Л. А. Витаветская*

**Аннотация.** Приводятся результаты анализа и моделирования временной динамики концентрации радионуклидов бериллий-7 (цезий-137) в атмосферной среде в Австрии на основе соответствующих анализа временных рядов после аварии на атомной электростанции Fukushima Daiichi. В качестве метода изучения используется комплекс ранее разработанных моделей и микросистемная технология, которые основаны на использовании методов нелинейного анализа,

теории хаоса и динамических систем, таких как метод корреляционного интеграла и средней взаимной информации, алгоритмы суррогатных данных и ложных ближайших соседей, анализ на основе показателей Ляпунова и энтропии Колмогорова, модели нелинейного прогнозирования и т. д.. В качестве входных данных использованы данные по долгосрочным временным рядам и распределению размера активности бериллия-7 в атмосферной среде в Австрии после аварии на атомной электростанции Fukushima Daiichi. Представлены данные о топологических и динамических инвариантах, а именно: корреляционной размерности и размерности вложения и Каплана-Йорка, показателям Ляпунова, энтропии Колмогорова и др. и обнаружены элементы хаоса в соответствующих временных рядах для бериллия-7. Касательно цезия-137, получить аналогичное адекватное заключение не удалось.

**Ключевые слова:** математическое моделирование, новые микросистемные технологии, концентрация радионуклидов, анализ временных рядов и наличие хаотических элементов

## 1. Introduction

Correct quantitative description of environmental radioactivity temporal and spatial dynamics, studying short-and long term radionuclides concentration in the atmosphere and other geospheres remains one of the most actual and important problems as in an applied ecology and environment protection as computational environment physics and informatics [1-12]. As indicated earlier (look, for example, [1-5], generally speaking, a solving such classes of the problems is needed as follows: a long-term investigation of radionuclides behaviour in the environment; elucidation of the mechanism of radionuclides transfer, deposition in the environment, elucidation of the global and local mechanisms of transformation and transportation of radioactive substances due to meteorological and hydrological phenomena and other factors, quantitative studying the radioactive impact on environment (atmosphere, hydrosphere, lithosphere etc), revealing and estimating the sources of radioactive materials and samples and archiving of research methodologies and many others. Especially important and actual is solving these problems in light of the well-known Chernobyl and Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants emergency accidents.

In many papers it has been performed an analysis of the short-and long-term temporal (time series) and spatial deposition of the radionuclides in atmosphere and other environments (look, for example, [9-16]). It is well known that the most models, that are currently used to estimate the radionuclides pollution level, are either de-

terministic or statistical, but their skilfulness are still limited due to both inability for describing non-linearities in pollutant time series and lack of understanding involved physical and/or chemical processes. Very useful alternative to the simplified deterministic and similar methodologies is provided by using the non-linear prediction, non-linear dynamical systems and a chaos theories. These studies show that chaos theory methodology can be applied and the short-range forecast by the non-linear prediction method can be satisfactory. In this paper for the first time we present the results of an analysis, modelling ( forecasting is to be presented in the next papers) a temporal dynamics of the of beryllium-7 (caesium-137) in the atmospheric environment time series and activity size distribution of iodine-131 in Austria after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants emergency accident. As method of studying we use the complex of the earlier developed models and microsystem technologies which are based on an advanced non-linear analysis technique and modern chaos theory and dynamical systems methods have been applied (in versions [7-13]). More concretely, speech is about such methods and algorithms as such as a correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc. As the input data we use the data on the long-term time series and activity size distribution of beryllium-7 (caesium-137) in the atmospheric environment time series in Austria after the Fukushima Nuclear Power Plant [6]. We listed the

data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy etc and found an availability of the chaos elements in the corresponding time series. Nevertheless this fact is not evidence of the universal availability of the deterministic chaos in any radionuclide concentration time series. In our opinion, the chaotic atmosphere processes are the obligatorily element for chaotic behaviour of the corresponding radionuclide concentration series. All calculations are performed with using "Geomath", "Superatom" and "Quantum Chaos" codes [9-18].

## 2. Technique of analysis and computing radionuclides pollutants fluctuations time dynamics

As the master elements of the technique of analysing the dynamical time series and computing invariants etc are described in many Refs. (look, for example, [9-11] and Refs. therein), below we are limited only by the key points, basing on our versions of the known algorithms. As usually, one should consider scalar measurements:  $s(n)=s(t_0+n\Delta t)=s(n)$ , where  $t_0$  is a start time,  $\Delta t$  is time step, and  $n$  is number of the measurements. In our case  $s(n)$  is the time series of the radionuclide concentration. The important test for a chaos is provided by the known Gottwald-Melbourne criterion. The known Gottwald-Melbourne chaotic test supposes a choice of the real constant  $c$  and definition of the following quantities (including a root-mean-square shift):

$$s(n) = \sum_{j=1}^n s(j) \cos(jc),$$

$$M(n) = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [s(j+n) - s(j)]^2. \quad (1)$$

If the dynamics of the system is regular (periodic or quasiperiodic), then with probability 1 the shift  $M(n)$  is a limited function of  $n$ . However, if the dynamics is chaotic (in a rather non-strict sense), then with probability 1  $M(n)=V(n)+O(1)$  for some  $V > 0$ . One could determine the rate of asymptotic growth of the root-mean-square shift:

$$K = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\log M(n)}{\log n}. \quad (2)$$

The cases of  $K = 0$  and  $K = 1$  correspond to a regular and chaotic dynamics respectively. As processes resulting in a chaotic behaviour are fundamentally multivariate, one needs to reconstruct phase space using as well as possible information contained in  $s(n)$ . According the algorithm by Packard et al and Takers-Mane [7,8], the main idea is that direct use of lagged variables  $s(n+\tau)$ , where  $\tau$  is some integer to be defined, results in a coordinate system where a structure of orbits in phase space can be captured. Using a collection of time lags to create a vector in  $d$  dimensions,  $y(n)=[s(n), s(n+\tau), s(n+2\tau), \dots, s(n+(d-1)\tau)]$ , the required coordinates are provided. The dimension  $d=d_E$  is the embedding dimension. The goal of the embedding dimension determination is to reconstruct a Euclidean space  $R^d$  large enough so that the set of points  $d_A$  can be unfolded without ambiguity. The embedding dimension,  $d_E$ , must be greater, or at least equal, than a dimension of attractor,  $d_A$ , i.e.  $d_E > d_A$ . So, to analyse a measured time histories for the studied radionuclide concentration series, the phase space of the system had been reconstructed by the delay embedding.

Further the corresponding versions of the mutual information approach, correlation integral analysis, false nearest neighbour algorithm, Lyapunov's exponent's analysis, and surrogate data method are used for comprehensive characterization [9-13]. The correlation dimension method provides a fractal-dimensional attractor. Statistical significance of the results was confirmed by testing for a surrogate data. The choice of proper time lag is important for the subsequent reconstruction of phase space. First approach is to compute the linear autocorrelation function  $C_L(\delta)$  and to look for that time lag where  $C_L(\delta)$  first passes through 0. This gives a good hint of choice for  $\tau$  at that  $s(n+j\tau)$  and  $s(n+(j+1)\tau)$  are linearly independent. Alternative approach is given by a nonlinear concept of independence, e.g. an average mutual information.

In order to compute an attractor dimension one should use the known Grassberger-Procaccia correlation integral analysis, which is one of the

widely used techniques to investigate the signatures of chaos in a time series. One must compute the correlation integral  $C(r)$ . If the time series is characterized by an attractor, then the correlation integral  $C(r)$  is related to the radius  $r$  as follows:

$$d = \lim_{\substack{r \rightarrow 0 \\ N \rightarrow \infty}} \frac{\log C(r)}{\log r}, \quad (3)$$

where  $d$  is correlation exponent. If the correlation exponent attains saturation with an increase in the embedding dimension, then the system is generally considered to exhibit chaotic dynamics. The saturation value of the correlation exponent is defined as the correlation dimension ( $d_2$ ) of the attractor.

The important point of studying the corresponding radionuclide temporal dynamics on the availability of chaotic elements is provided by the Lyapunov's exponents algorithm. It is well-known that the spectrum of the Lyapunov's exponents is one of dynamical invariants for nonlinear system with chaotic behaviour. The Lyapunov's exponents are related to the eigenvalues of the linearized dynamics across the attractor. Negative values show stable behaviour while positive values show local unstable behaviour. The limited predictability of the chaos is quantified by the local and the global Lyapunov's exponents, which can be determined from measurements. The predictability can be estimated by the Kolmogorov entropy, which is proportional to a sum of the positive Lyapunov's exponents. For chaotic systems, being both stable and unstable, the Lyapunov's exponents indicate the complexity of the dynamics. The largest positive value determines some average prediction limit. Since the Lyapunov's exponents are defined as asymptotic average rates, they are independent of the initial conditions, and hence the choice of trajectory, and they do comprise an invariant measure of the attractor. An estimate of this measure is a sum of the positive Lyapunov's exponents. The estimate of the attractor dimension is provided by the conjecture  $d_L$  and the Lyapunov's exponents are taken in descending order. To compute Lyapunov's exponents, the known method with linear fitted map, although the maps with higher order polynomials can be used too (look details in Refs. [9-13]).

The principally important point in development of the time series prediction model for complex systems is in the using the traditional concept of a compact geometric attractor in which evolves the measurement data. More advanced versions of the prediction models include using of the neural network and other algorithms. The existing so far in the theory of chaos prediction models are based on the concept of an attractor. The meaning of the concept is in fact a study of the evolution of the attractor in the phase space of the system and, in a sense, modelling ("guessing") time-variable evolution. From a mathematical point of view, it is a fact that in the phase space of the system an orbit continuously rolled on itself due to the action of dissipative forces and the nonlinear part of the dynamics, so it is possible to stay in the neighborhood of any point of the orbit  $y(n)$  other points of the orbit  $y^r(n)$ ,  $r = 1, 2, \dots, N_B$ , which come in the neighborhood  $y(n)$  in a completely different times than  $n$ . Of course, then one could try to build different types of interpolation functions that take into account all the neighborhoods of the phase space and at the same time explain how the neighborhood evolve from  $y(n)$  to a whole family of points about  $y(n+1)$ . Use of the information about the phase space in the simulation of the evolution of some geophysical (environmental, etc.) of the process in time can be regarded as a fundamental element in the simulation of random processes. A principal aspect in obtaining the successful prediction model data is connected with a correct, physically reasonable constructing a parameterized nonlinear function  $F(x, a)$ , which transform  $s(n)$  to  $s(n+1) = F(s(n), a)$ , and then using different criteria for determining the parameters  $a$ . One of the most spread versions of local prediction algorithm is provided the following form:

$$s(n + \Delta n) = a_0^{(n)} + \sum_{j=1}^{d_A} a_j^{(n)} s(n - (j-1)\tau), \quad (4)$$

where  $\Delta n$  - the time period for which a forecast .

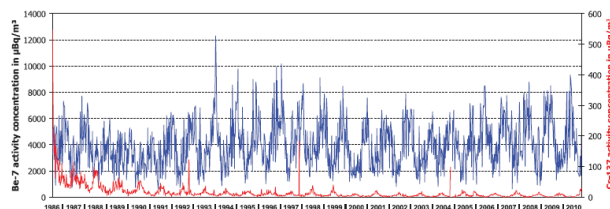
The coefficients  $a_j^{(k)}$ , may be determined by a least-squares procedure, involving only points  $s(k)$  within a small neighbourhood around the reference point. Thus, the coefficients will vary



throughout phase space. Other details can be found, for example, in Refs. [9-13].

### 3. The results of analysis of beryllium-7 concentrations long-term time series and conclusions

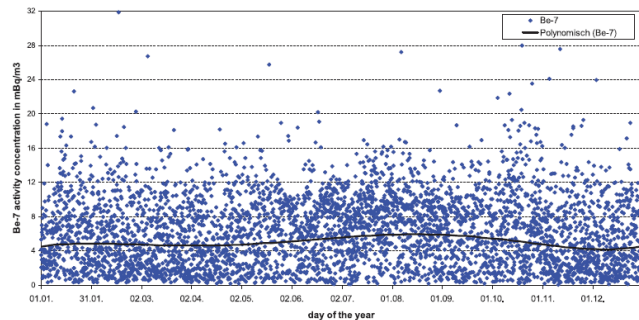
As the input data we use the data on the long-term time series and activity size distribution of beryllium-7 in the atmospheric environment time series and activity size distribution of iodine-131 in Austria after the Fukushima NPP. According to [2], the cosmogenic radionuclide Be-7 is formed through spallation reactions with decreasing production rates with atmospheric depth and about two thirds of the Be-7 production takes place in the stratosphere and one third in the troposphere (mainly in the upper troposphere). Due to stratosphere- to- troposphere exchange the Be-7 is also present in the near-to-ground atmosphere. In Figure 1 there is present the typical time series of Be-7 and Cs-137 over a period of 24 years. As various factors govern the Be-7 activity concentration in the near-to-ground atmosphere they are highly episodic and vary strongly. This is well demonstrated in Figure 2 where the Be-7 results are given per day of the year from the high-altitude station at Sonnblick (3106 m) for a period of 15 years.



**Figure 1. Time series of Be-7 (upper line) and Cs-137 (lower line) in the near-to-ground atmosphere in Klagenfurt (Austria) from August 1986 to December 2010 (Ref. [2]).**

In the Table 1 we list the data for the time lag calculated for first 103 values of the Be-7 time series. The autocorrelation function for all time series remains positive. In the Table 2 we present our advanced data on the correlation dimension ( $d_2$ ), embedding dimension ( $d_E$ ), Kaplan-Yorke dimension ( $d_L$ ), two Lyapunov's exponents ( $\lambda_1, \lambda_2$ ), the

Kaplan-Yorke dimension ( $d_L$ ), and average limit of predictability ( $Pr_{max}$ , hours) for time series of the  $NO_2$  at sites of the Gdansk (during 2003 year). From the table 2 it can be noted that the Kaplan-Yorke dimensions, which are also the attractor dimensions, are smaller than the dimensions obtained by the algorithm of false nearest neighbours.



**Figure 2. Be-7 results in air per day of the year from a high-altitude station in Austria (Sonnblick, 3106 m) for the period July 1996 to December 2010. (Ref. [2]).**

Firstly, one should note that the presence of the two (from six) positive  $\lambda_i$  suggests the system broadens in the line of two axes and converges along four axes that in the six-dimensional space.

**Table 1**  
**Time lags (hours) subject to different values of  $C_L$ , and first minima of average mutual information,  $I_{min1}$ , for the Be-7 time series**

$C_L = 0$	$C_L = 0,1$	$C_L = 0,5$	$I_{min1}$
-	142	22	14

To conclude, we had presented the results of an analysis of temporal dynamics of the beryllium-7 (caesium-137) in the atmospheric environment in Austria after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants emergency accident. As method of studying we use the complex of the earlier developed algorithms versions and microsystem technology which are based on an advanced non-linear analysis technique and modern chaos theory and dynamical systems methods (in versions [1,9,-13]).



Table 2

**The correlation dimension ( $d_2$ ), embedding dimension ( $d_E$ ), first two Lyapunov's exponents,  $E(\lambda_1, \lambda_2)$ , Kaplan-Yorke dimension ( $d_L$ ), and the Kolmogorov entropy ( $K_{ent}$ ), the Gottwald-Melbourne parameter for the Be-7 time series (see text)**

$\tau$	$d_2$	$d_E$	$\lambda_1$	$\lambda_2$	$d_L$	$K_{ent}$	$K$
Be-7							
14	3,7	6	0,0157	0,0053	4,4	0,02	0,61

More concretely, speech is about such methods and algorithms as such as a correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc. As the input data we use the data on the long-term time series and activity size distribution of beryllium-7 in the atmospheric environment time series in Austria after the Fukushima NPP [2]. We listed the data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy etc and found an availability of the chaos elements in the corresponding Be-7 time series. Nevertheless this fact is not evidence of the universal availability of the deterministic chaos in any radionuclide concentration time series. In particular, we could not get the analogous conclusion for the corresponding Cs-137 time series.

### References

- [1]. Gubanova E.R., Glushkov A.V., Khetselius O.Yu., Bunyakova Yu.Ya., Buyadzhi V.V., Pavlenko E.P., New methods in analysis and project management of environmental activity: Electronic and radioactive waste.- Kharkiv: FOP.- 2017.-120P.
- [2]. Ringer W., Klimstein J., Bernreiter M., Long-term time series and activity size distribution of beryllium-7 in the atmospheric environment time series and activity size distribution of iodine-131 in Austria after the Fukushima NPP accident//Radioprotect.-2011.-Vol.46(6).-P.S7–10.
- [3]. Glushkov A.V., Safranov T.A., Khetselius O.Yu., Ignatenko A.V., Buyadzhi V.V., Svinarenko A.A., Analysis and forecast of the environmental radioactivity dynamics based on methods of chaos theory: General conceptions//Environmental Problems.-2016.-Vol.1,N2.-P.115-120.
- [4]. Khetselius O.Yu., Relativistic perturbation theory calculation of the hyperfine structure parameters for some heavy-element isotopes//Int. Journ. of Quantum Chemistry.-2009.-Vol.109, Issue 14.-P.3330-3335.
- [5]. Khetselius O.Yu., Hyperfine structure of radium// Photoelectronics.-2005.-N14.-P.83-85.
- [6]. Glushkov A.V., Relativistic and correlation effects in spectra of atomic systems.-Odessa: Astroprint.-2006.-400P.
- [7]. Packard N.H., Crutchfield J.P., Farmer J.D., Shaw R.S., Geometry from a time series// Phys. Rev.Lett.-1980.-Vol.45.-P.712–716.
- [8]. Takens F., Dynamical systems and turbulence, ed by D. Rand and L. Young (Springer, Berlin).-1981.-P.366–381
- [9]. Glushkov A.V.: Methods of a chaos theory. Odessa, Astroprint, 2012.
- [10]. Glushkov A.V., Khetselius O.Y., Brusentseva S.V., Zaichko P.A., Ternovsky V.B., Studying interaction dynamics of chaotic systems within a non-linear prediction method: application to neurophysiology// Advances in Neural Networks, Fuzzy Systems and Artificial Intelligence.-2014.-Vol.21.-P.69-75.
- [11]. Glushkov A.V., Svinarenko A.A., Buyadzhi V.V., Zaichko P., Ternovsky V., Chaos-geometric attractor and quantum neural networks approach to simulation chaotic evolutionary dynamics during perception process//Advances in Neural Networks, Fuzzy Systems and Artificial Intelligence.-2014.-Vol.21.-P.143-150.
- [12]. Prepelitsa G.P., Buyadzhi V.V., Ternovsky V.B. Non-linear analysis of chaotic self-oscillations in backward-wave tube//Photoelectronics.- 2013.-Issue 22.-P.103-107.

- [13]. Glushkov A.V., Relativistic Quantum Theory. Quantum mechanics of Atomic Systems.-Odessa: Astroprint, 2008. - 700P.
- [14]. Glushkov A.V., Khetselius O.Yu., Loboda A.V., Svinarenko A.A., QED approach to atoms in a laser field: Multi-photon resonances and above threshold ionization//Frontiers in Quantum Systems in Chemistry and Physics (Springer).-2008.-Vol.18.-P.543-560.
- [15]. Glushkov A.V., Khetselius O.Yu., Lovett L., Electron- $\beta$ -Nuclear Spectroscopy of Atoms and Molecules and Chemical Environment Effect on the  $\beta$ -Decay parameters// Advances in the Theory of Atomic and Molecular Systems Dynamics, Spectroscopy, Clusters, and Nanostructures. (Springer).-2009.-Vol.20.-P.125-152.
- [16]. Glushkov A.V., Khetselius O.Yu., Malinovskaya S.V., Optics and spectroscopy of cooperative laser-electron nuclear processes in atomic and molecular systems - new trend in quantum optics// Europ. Phys. Journ. ST.-2008.-Vol. 160, Issue 1.-P.195-204.
- [17]. Glushkov A.V., Khetselius O.Yu., Malinovskaya S.V., Spectroscopy of cooperative laser-electron nuclear effects in multiatomic molecules// Molec. Phys.-2008.-Vol.106.-P.1257-1260.
- [18]. Malinovskaya S.V., Glushkov A.V., Khetselius O.Yu., Lopatkin Yu., Loboda A.V., Svinarenko A., Nikola L., Pereyagina T., Generalized energy approach for calculating electron collision cross-sections for multicharged ions in a plasma: Debye shielding model// Int. Journ. Quant. Chem.-2011.-Vol.111,N2.-P.288-296.

Стаття надійшла до редакції 01.12.2017 р.

PACS 32.80Dz; UDC 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119607>

## **ANALYSIS OF THE BERYLLIUM-7 ACTIVITY CONCENTRATION DYNAMICS IN THE ATMOSPHERIC ENVIRONMENT TIME SERIES AFTER THE FUKUSHIMA DAIICHI NUCLEAR POWER PLANTS EMERGENCY**

*Yu. Ya. Bunyakova, V. B. Ternovsky, Yu. V. Dubrovskaya, A. V. Ignatenko, A. A. Svinarenko,  
L. A. Vitavetskaya*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine  
E-mail: [juliby13@gmail.com](mailto:juliby13@gmail.com)

### **Summary**

We present the results of an analysis, modelling a temporal dynamics of the beryllium-7 (caesium-137) activation concentration in the atmospheric environment time series in Austria after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants emergency accident. As method of studying we use the complex of the earlier developed models and microsystem technologies which are based on an advanced non-linear analysis technique and modern chaos theory and dynamical systems and a chaos theory methods (Correlation integral approach, average mutual information, surrogate data, false nearest neighbours algorithms, the Lyapunov's exponents and Kolmogorov entropy analysis, nonlinear prediction models etc). As the input data we use the data on the long-term time series and activity size distribution of beryllium-7 (caesium-137) in the atmospheric environment time series in Austria after the Fukushima Nuclear Power Plant. We have listed the data on the topological and dynamical invariants, namely, the correlation, embedding, Kaplan-Yorke dimensions, the Lyapunov's exponents, Kolmogorov entropy etc and found an availability of the chaos elements in the corresponding Be-7 time series. Regarding the caesium-137, we could not get the analogous adequate conclusion for the corresponding time series.

**Keywords:** mathematical modelling, new microsystem technologies, radionuclide activation concentration, time series analysis and chaotic elements

PACS 32.80Dz; УДК 539.192

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119607>

## **АНАЛІЗ ДИНАМІКИ КОНЦЕНТРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДА BERYLLIUM-7 В АТМОСФЕРНОМУ СЕРЕДОВИЩІ НА ОСНОВІ АНАЛІЗУ ЧАСОВИХ РЯДОВ ПІСЛЯ АВАРІЙНОЇ СИТУАЦІЇ НА АТОМНІЙ ЕЛЕКТРОСТАНЦІЇ FUKUSHIMA DAIICHI**

*Ю. Я. Бунякова, В. Б. Терновський, Ю. В. Дубровська, Г. В. Ігнатенко, А. А. Свинаренко,  
Л. А. Вітаветська*

Одеський державний екологічний університет, Львівська 15, Одеса, 65016

E-mail: [juliby13@gmail.com](mailto:juliby13@gmail.com)

### **Реферат**

Наводяться результати аналізу і моделювання часової динаміки концентрації радіонуклідів берилій-7 (цезій-137) в атмосферному середовищі в Австрії на основі відповідного аналізу часових рядів після аварії на атомній електростанції Fukushima Daiichi. В якості методу вивчення використовується комплекс раніше розроблених моделей і мікросистемна технологія, які засновані на використанні методів нелінійного аналізу, теорії хаосу і динамічних систем, таких як метод кореляційного інтеграла і середньої взаємної інформації, алгоритми сурогатних даних і помилкових найближчих сусідів, аналіз на основі показників Ляпунова і ентропії Колмогорова, моделі нелінійного прогнозування і т. д. . В якості вхідних даних використані дані за довгостроковими часовими рядами і розподілу ра змери активності берилію-7 в атмосферному середовищі в Австрії після аварії на атомній електростанції Fukushima Daiichi. Представлені дані про топологічні і динамічні інваріанти, а саме: кореляційну розмірність, розмірності вкладення та Каплана-Йорка, показники Ляпунова, ентропію Колмогорова та ін. і виявлені елементи хаосу в відповідних часових рядах для берилію-7. Відносно цезію-137, отримати аналогічний адекватний висновок не вдалося.

**Ключові слова:** математичне моделювання, нові мікросистемні технології, концентрація радіонуклідів, аналіз часових рядів і наявність хаотичних елементів

# СЕНСОРИ ТА ІНФОРМАЦІЙНІ СИСТЕМИ

## SENSORS AND INFORMATION SYSTEMS

PACS 32.80.Rm, 05.45.+b; UDC 535.42.,539.184

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119611>

### AN ADVANCED LASER PHOTOIONIZATION SEPARATION SCHEME FOR RADIOACTIVE ISOTOPES AND PRODUCTS OF ATOMIC ENERGETICS: URANIUM AND THE TRANSURANIUM ELEMENTS

*V. B. Ternovsky, A. V. Glushkov, A. V. Smirnov, A. A. Kuznetsova, O. Yu. Khetselius, V. V. Buyadzhi*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine

E-mail: [ternovskybv@gmail.com](mailto:ternovskybv@gmail.com)

### AN ADVANCED LASER PHOTOIONIZATION SEPARATION SCHEME FOR RADIOACTIVE ISOTOPES AND PRODUCTS OF ATOMIC ENERGETICS: URANIUM AND THE TRANSURANIUM ELEMENTS

*V. B. Ternovsky, A. V. Glushkov, A. V. Smirnov, A. A. Kuznetsova, O. Yu. Khetselius, V. V. Buyadzhi*

**Abstract.** We present an advanced, optimal laser-photoionization scheme of separating heavy radioactive isotopes and nuclear isomers, in particular, the uranium isotopes and the transuranium elements. The advanced scheme is based on the selective laser excitation of the isotope atom into the highly-excited Rydberg states and further electric field ionization mechanism. Some preliminary data for the autoionization resonance characteristics for U and transuranium isotopes are obtained. An appreciable dependence of the reorientation decay velocity of the autoionization resonances at an electric field is analyzed. Two autoionization resonances decay channels are predicted as well as the effect of the giant autoionization resonance width broadening in the relatively weak electric field for uranium and transuranium elements. Using the optimal laser action model and density matrices formalism it has been carried out modelling the optimal scheme of the U isotopes separation. It is presented The optimal scheme  $\gamma$ - laser on quickly decayed nuclear isomers with using laser photoionization sorting excited nuclei with autoionization and electric field ionization mechanisms.

**Keywords:** laser photoionization method, highly radioactive isotopes, new spectroscopy of autoionization resonances for uranium, optimal scheme of isotope laser separation



## УДОСКОНАЛЕНА ЛАЗЕРНО-ФОТОІОНІЗАЦІЙНА СХЕМА ПОДІЛЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ ІЗОТОПІВ ТА ПРОДУКТІВ АТОМНОЇ ЕНЕРГЕТИКИ: УРАН ТА ТРАНСУРАНОВІ ЕЛЕМЕНТИ

*В. Б. Терновський, О. В. Глушков, А. В. Смірнов, Г. А. Кузнецова, О. Ю. Хецеліус, В. В. Буяджи*

**Анотація.** Запропонована нова, оптимальна схема лазерно-фотоіонізаційного поділення важких радіоактивних ізотопів і ядерних ізотопів, зокрема ізотопів урану і трансураних елементів. Покращена схема заснована на селективному лазерному збудженні атомів радіоактивного ізотопу у високоезбуджені рідбергівські стани і автоіонізаційному механізмі іонізації в присутності слабкого електричного поля. Отримані деякі попередні дані для енергій автоіонізаційних резонансів для U і трансураних ізотопів. Представлена залежність швидкості розпаду резонансів в слабкому постійному електричному полі. Прогнозуються два канали розпаду автоіонізаційних станів і передбачений ефект гігантського розширення автоіонізаційних резонансів в спектрі урану у відносно слабкому електричному полі, що вказує на принципово нову спектроскопію автоіонізаційних станів для урану і трансураних елементів. Використовуючи оптимальну модель лазерного впливу і формалізм матриць густини, проведено моделювання оптимальної схеми поділу ізотопів U. Представлена оптимальна схема гамма-лазера на ядерних ізотопах, що швидко розпадаються, з використанням лазерно-фотоіонізаційної схеми поділення (сортування) збуджених ядер і подальшої автоіонізації в присутності електричного поля.

**Ключові слова:** лазерний фотоіонізаційний метод, високо радіоактивні ізотопи, нова спектроскопія автоіонізаційних резонансів для урану, оптимальна схема лазерного поділення ізотопів

## УСОВЕРШЕНСТВОВАННАЯ ЛАЗЕРНО-ФОТОИОНИЗАЦИОННАЯ СХЕМА РАЗДЕЛЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ, ПРОДУКТОВ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ: УРАН И ТРАНСУРАНОВЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ

*В. Б. Терновский, А. В. Глушков, А. В. Смирнов, А. А. Кузнецова, О. Ю. Хецелиус, В. В. Буяджи*

**Аннотация.** Предложена новая, оптимальная схема лазерно-фотоионизационного разделения тяжелых радиоактивных изотопов и ядерных изотопов, в частности изотопов урана и трансураних элементов. Улучшенная схема основана на селективном лазерном возбуждении атомов изотопа в высоковозбужденные ридберговские состояния и автоионизационном механизме ионизации в присутствии слабого электрического поля. Получены некоторые предварительные данные для энергий автоионизационных резонансов для U и трансураних изотопов. Представлена зависимость скорости распада автоионизационных резонансов в слабом постоянном электрическом поле. Прогнозируются два канала распада автоионизационных состояний и предсказан эффект гигантского уширения автоионизационных резонансов в спектре урана в относительно слабом электрическом поле, что указывает на принципиально новую спектроскопию автоионизационных резонансов урана и трансураних элементов. Используя оптимальную модель лазерного воздействия и формализм матриц плотности, проведено моделирование оптимальной схемы разделения изотопов U. Представлена оптимальная схема гамма-лазера на

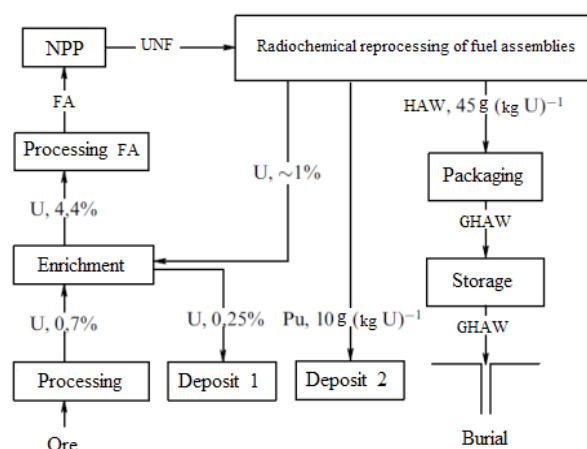
быстро распадающихся ядерных изомерах с использованием лазерно-фотоионизационной схемы разделения (сортировки) возбужденных ядер и последующей автоионизации в присутствии электрического поля.

**Ключевые слова:** лазерный фотоионизационный метод, высоко радиоактивные изотопы, новая спектроскопия автоионизационных резонансов для урана, оптимальная схема лазерного разделения изотопов»

## 1. Introduction

Search of the effective, optimal methods and technologies for the radioactive isotopes and nuclear isomers (products of the atomic energetics) detection and separation and also obtaining especially pure substances at atomic level remains one of the very actual problem of modern atomic and nuclear physics, nuclear technologies and atomic energetics [1-4]. These topic is of a great importance because of the increasing development of the modern nuclear energetics. Nuclear power currently despite the known progress is potentially extremely dangerous area, especially in emergency situations like the Chernobyl accident or accident at Japanese NPP “Fukushima. Obviously, the problem of radiation and ecological safety of nuclear power are generated spontaneously formed structure currently used nuclear power cycle (look Figure 1 [1]), according to which in its final stage of waste nuclear fuel to stand for 50 years in storage, encapsulate, disposed on or after 10 years of aging in nuclear storage facilities sent for recycling [1-4]. The latest comes usually only to radiochemical regeneration of spent U, when: (i) from it is extracted Pu, isolated minor actinides (Np, Am, Cm) and fission products, classifying them as high-level waste, (ii) high-level waste is immobilized, (iii) retain for 50 years in ground conditions and (iv) disposed in geological formations [1-4]. Then extracted (energy) Pu and U regenerated are sent for storage for future use for the production of mixed U-Pu-fuels. One of the schemes of such open nuclear fuel cycle is analyzed in detail in review [2]. It should be recalled that the use of power Pu as dividing components in the U-Pu-fuel complicates number of reasons, including the danger of his treatment in the clear and the threat of uncontrolled proliferation, and certainly sub-optimal isotopic composition, the need of accumulation and long-term storage of Pu etc. Because of these circumstances,

now generally in enterprises processed only 10-15% of spent nuclear fuel, which is discharged, and the rest are sent to long-term storage and direct burial that according to various estimates (see [1]), annually output increases the amount of circulation U to 10-12 thousand tons.



**Figure 1. Scheme of open nuclear power cycle. For the U concentration specified isotope  $^{235}\text{U}$ . For Pu and high-level waste were given their content in the spent nuclear fuel from WWER-1000.**

One of the most promising ways to reduce radiation hazards, in particular, the so-called nuclear transmutation [1-4]. This is the transmutation of radioactive waste transmutation of long-lived fission products, transmutation of actinides, which can be done either in reactors of various types and, in principle, the so-called subcritical power and nuclear plants that have increased compared to conventional reactors nuclear safety. These questions are being continued studied intensively. This issue is being dedicated to a great number of works, because, obviously, the fundamental solution to the problem of destruction of long-lived radioactive waste fission products from spent nuclear fuel will undoubtedly contribute to further development of safe nuclear energy. In a light of saying, the effective technologies of detection

and separation of the heavy radioactive isotopes are critically important [1-10]. The basis for its successful realization is, at first, carrying out the optimal multi stepped photo-ionization schemes for different elements and, at second, availability of enough effective UV and visible range lasers with high average power (Letokhov, 1977, 1979, 1983; etc) [2,3]. The standard laser photo-ionization scheme may be realized with using processes of the two-step excitation and ionization of atoms by laser pulse. The scheme of selective ionization of atoms, based on the selective resonance excitation of atoms by laser radiation into states near ionization boundary and further photo-ionization of the excited states by additional laser radiation, has been at first proposed and realized by Letokhov et al (Letokhov, 1969, 1977) [2]. It represents a great interest for laser separation of isotopes and nuclear isomers. The known disadvantage of two-step laser photoionization scheme a great difference between cross-sections of resonant excitation  $\sigma_{\text{exc}}$  and photo-ionization  $\sigma_{\text{ion}}$ . It requires using very intensive laser radiation for excited atom ionization. The same is arisen in a task of sorting the excited atoms and atoms with excited nuclei in problem of creation of  $\gamma$ -laser on quickly decayed nuclear isomers. Originally, Goldansky and Letokhov (1974) (see also [2]) have considered a possibility of creating a  $\gamma$ -laser, based on a recoilless transition between lower nuclear levels and shown that a  $\gamma$ -laser of this type in the 20-60 keV region is feasible. These authors has estimated the minimal number of excited nuclei required for obtaining appreciable amplification and possibility of producing sufficient amounts of excited nuclei by irradiation of the target with a thermal neutron beam or by resonant  $\gamma$ -radiation. It is important that low-inertia laser selection of a relatively small friction of excited nuclei of a given composition from the target by the two-step method of selective laser photoionization of atoms with excited nuclei by the radiation from two lasers is principally possible. But, it is obvious that here there is a problem of significant disadvantage of the two-step selective ionization of atoms by laser radiation method. The situation is more simplified for autoionization resonance's in the atomic spectra, but detailed data about characteristics of these levels are often absent (Letokhov, 1977, 1983; Glushkov & Ivanov, 1986, 1992)

[2-7]. The key problems here are connected with difficulties of theoretical studying and calculating the autoionization resonance characteristics. Several new optimal schemes for the laser photo-ionization sensors of separating heavy isotopes and nuclear isomers are proposed [2-7]. These schemes are based on the selective laser excitation of the isotope atoms into excited Rydberg states and further AC, DC electric field ionization or collision mechanisms with using the models [8-16].

In this paper we present an advanced, optimal laser-photoionization scheme of separating heavy radioactive isotopes and nuclear isomers, in particular, the uranium isotopes and the transuranium elements. The advanced scheme is based on the selective laser excitation of the isotope atom into the highly-excited Rydberg states and further electric field ionization mechanism. Some preliminary data for the autoionization resonance characteristics for U and transuranium isotopes are obtained. An appreciable dependence of the reorientation decay velocity of the autoionization resonances at an electric field is analyzed. Two autoionization resonances decay channels (traditional Beutler-Fano channel and new Letokhov-Ivanov channel) are predicted as well as the effect of the giant autoionization resonance width broadening in the relatively weak electric field for uranium and transuranium elements. Using the optimal laser action model and density matrices formalism [7-12], it has been carried out modeling the optimal scheme of the U and Np and Pu isotopes (nuclei) separation.

## 2. Laser photoionization separation of heavy radioactive isotopes (uranium and transuranium elements): Qualitative aspects

Let us remind that in a classic scheme the laser excitation of the isotopes and nuclear isomers separation is usually realized at several steps: atoms are resonantly excited by laser radiation and then it is realized photo ionization of excited atoms. In this case photo ionization process is characterized by relatively low cross section  $\sigma_{\text{ion}}=10^{-17}\text{-}10^{-18}\text{cm}^2$  and one could use the powerful laser radiation on the ionization step. This is not acceptable from the energetics point of view [2].

The alternative mechanism is a transition of atoms into Rydberg states and further ionization by

electric field or electromagnetic pulse. As result, requirements to energetic of the ionized pulse are decreased at several orders. The main feature and innovation of the presented scheme is connected with using the DC electric field (laser pulse) autoionization on the last ionization step of the laser photoionization technology. There is a principal difference of the simple ionization by DC electric field. The laser pulse ionization through the auto ionized states decay channel has the advantages (more high accuracy, the better energetics, universality) especially for heavy elements and isotopes, where the DC electric field ionization from the low excited states has not to be high effective. This idea is a key one in the realization of sorting the definite excited atoms with necessary excited nuclei of the  $A^+$  kind, obtained by optimal method of selective photo-ionization of the  $A$  kind atoms at the first steps. The suitable objects for modeling laser photoionization separation technology are the radioactive isotopes of Cs, I, U and the long-lived transuranium elements etc. These isotopes are the most dangerous especially in the light of emergency situations like the Chernobyl accident or accident at Japanese NPP "Fukushima. We considered a scheme for the laser separation and sensing the uranium and thulium isotopes. All necessary excitation and ionization constants for solution of the density matrix equations system are calculated within above described model and methods [5-10]. The laser photoionization scheme for  $U$  isotopes included the following steps: i). Laser excitement of the  $^{235}U$  isotopes from the ground  $5f^36d7s^2-^5L_6^o$  state and low lying metastable  $5f^36d7s^2-^5K_5^o$  state with energy  $620,32 \text{ cm}^{-1}$ ; The final step is the autoionization of the Rydberg excited atoms by a laser pulse or DC electric field pulse ionization and output of the created ions. The scheme will be optimal if an atom is excited by laser radiation to state, which has the decay probability due to the autoionization (pulse ionization) higher than the radiation decay probability. So, one could guess that the accurate data on the autoionization states energies and widths and the same parameters for the DC Stark resonances are needed. The consistent and accurate theoretical approach to calculation of these characteristics is based on the operator perturbation theory formalism and corresponding advanced relativistic version [5-16].

### 3. Relativistic model of autoionization decay of heavy atoms in a DC electric field

Probability of the ionization (autoionization width) for highly excited atoms by electric field is given by the full flow of probability through the plane, which is perpendicular to  $z$ -axis. Calculation of the probability requires a solution of the axially symmetrical problem, when a potential barrier separates two classically allowed regions. The examples of the application of such problem are an atom in a uniform electric field, the two-centre problem etc. Let us find the wave function in the below-barrier region. In this case, the wave function is localized in the vicinity of the most probable tunnelling way, that is the potential symmetry axis  $z$ . For the bi-spinor

$$\Psi = \begin{pmatrix} \xi \\ \eta \end{pmatrix}, \quad (1)$$

the Dirac equation has the following form:

$$\begin{aligned} c\bar{\sigma}p\xi &= (E - V + c^2)\eta, \\ c\bar{\sigma}p\xi &= (E - V - c^2)\xi. \end{aligned} \quad (2)$$

Inserting first equation of the system (2) into second one and using substitution

$$\begin{aligned} \xi &= (W^+)^{1/2}\Phi, \\ W^\pm &= E - V \pm c^2 \end{aligned} \quad (3)$$

we obtain the second-order equation

$$\Delta\Phi + K^2\Phi = 0$$

$$K^2 = \frac{1}{\hbar^2 c^2} \left[ (E - V)^2 - c^4 \right] - \frac{\Delta V}{2W^+} - \frac{3}{4} \left( \frac{\bar{\nabla} V}{W^+} \right) + \frac{i}{W^+} \bar{\sigma} [\bar{\nabla} V, \bar{\nabla}]. \quad (4)$$

Since the potential is axially symmetrical, we seek a solution to this equation in the cylinder system of co-ordinates as follows:

$$\Phi = \begin{pmatrix} F_1(z, p) \exp[i(m - 1/2)\varphi] \\ F_2(z, p) \exp[i(m + 1/2)\varphi] \end{pmatrix}. \quad (5)$$

Substituting (5) into (4) gives the matrix equation:

$$(\Delta + \partial)F = (\hbar^{-2}q^2 + \gamma)F, \quad F = \begin{pmatrix} F_1 \\ F_2 \end{pmatrix} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} q &= \frac{1}{c} \left[ c^4 - (E - V)^2 \right]^{1/2}, \\ \partial &= \frac{1}{W^+} \left( \frac{\partial V}{\partial p} \frac{\partial}{\partial z} - \frac{\partial V}{\partial z} \frac{\partial}{\partial p} \right) \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned}$$



$$\gamma = \begin{pmatrix} a_{m-1/2} & b_{m+1/2} \\ b_{m-1/2} & a_{-m-1/2} \end{pmatrix},$$

$$a_\mu(z, p) = \frac{\mu^2}{p^2} + \frac{1}{W^+} \left[ \frac{\mu}{\rho} \frac{\partial V}{\partial p} + \frac{\Delta V}{2} + \frac{3}{4} \frac{(\bar{\nabla} V)^2}{W^+} \right],$$

$$b_\mu(z, p) = -\frac{\mu}{pW^+} \frac{\partial V}{\partial z}.$$

A solution for system (6) is found numerically on the basis of the finite differences numerical algorithm [5]. In a case of atomic ionization by the pulsed field, probability of process is defined by the following expression:

$$W(nlm) = \sum_{n_2} (a_{n_1 n_2}^{nlm})^2 W(n_1 n_2 m). \quad (7)$$

Here  $W(n, n_2, m)$  is the state decay probability;  $a$  are the coefficients of expansion of the  $\psi(nlm)$  functions on the parabolic functions  $\psi(n_1 n_2 m)$ . In real multi-electron atom it is necessary to account for the influence of the electron shells, which results in the changing the potential barrier and wave functions. To define the wave functions and electron state energies in an electric field, one needs to carry out the diagonalization of energy matrix, calculated between states with the same  $n$  [5-8]. The diagonalization of the complex energy matrix leads to complex energy correction:  $\text{Re}E - i\Gamma/2$ , where  $\text{Re}E$  is the level shift and  $\Gamma$  is the level width, including the radiation and autoionization widths simultaneously. If the effects of the autoionization resonance decay are included in the matrix  $M$ , then  $\Gamma$  presents only the autoionization width of the state. Only  $\text{Re}M$  is diagonalized. The imaginary part is converted by means of the matrix of eigen-vectors  $\{C_{mk}\}$ . The eigen-vectors are obtained by diagonalization of  $\text{Re}M$ :

$$\text{Im} M_{ik} = \sum_{ij} C_{mi}^* M_{ij} C_{jk}. \quad (8)$$

The other details of calculation procedure are given in refs. [7-16].

#### 4. Some numerical results and concussions

Here we present some key results of numerical calculating the ionization characteristics for heavy isotope of the uranium and thulium and modelling the optimal scheme parameters of the

laser photoionization sensor. In figure 2 we present our calculation results on the critical electric field strength in dependence upon effective quantum number  $n^*$  for atom of U. The points in the figure correspond to the experimental data, solid line 1 is a theoretical estimate based on the classical relation ( $E \sim 1/16 n^4$ ; Stark shift of the level and tunneling of the electron are not taken into account), solid line 2 - calculation by formula [2] for a pulsed electric field; the dotted line is the results of this calculation. It is stressed that the hydrogen-like approximation gives an inaccuracy 15-20% (see [5-8]). At the same time consistent relativistic calculation has given the results in an excellent agreement with experiment. The same situation takes a place for the transuranium isotopes of Np and Pu. The most interesting feature of the ionization in an external electric field is connected with an effect of electric field on the autoionization resonances in the heavy isotopes (the last step of the laser photoionization scheme).

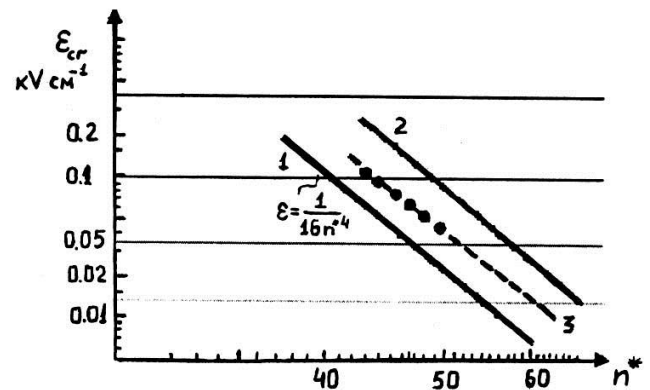


Figure 2. Dependence of the critical electric field strength on the effective principal number for U: points - experiment; solid line 1 - theoretical evaluation based on classical considerations; solid line 2 - calculation on the basis of Letokhov-Ivanov formula; the dotted line is the present work [2,5-8].

Table 1 illustrates the calculated energies (in  $\text{cm}^{-1}$ ) of the levels of the higher members of the Rydberg series of uranium, counted from the level of  $32899.790 \text{ cm}^{-1}$ ; excitation sequence:  $6056.81 + 6098.10 + (5880-5890) \text{ \AA } 5f^3 7s^2 np$ . (experimental data from [17]).



Table 1

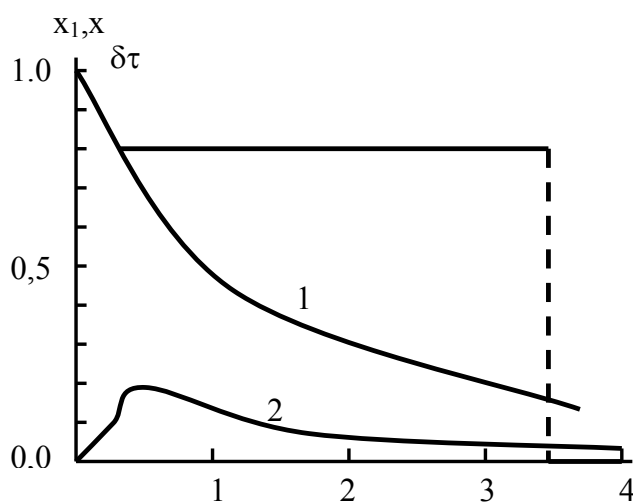
**The calculated energies (in  $\text{cm}^{-1}$ ) of the levels of the higher members of the Rydberg series of uranium, counted from the level of  $32899.790 \text{ cm}^{-1}$ ; excitation sequence:  $6056.81+6098.10+(5880-5890)\text{\AA}$   $5f^37s^2np$  ( $5f^37s^2nf$ )**

$E_{exp}$ [9]	Our data	$n_{exp}^*$	$n_{theor}^*$
49878.5	49878.3	37.13	42
49882.5	49882.2	38.10	43
49886.6	49886.2	39.18	44
49890.2	49889.8	40.20	45
49893.6	49893.1	41.25	46
49896.6	49896.1	42.24	47
49899.4	49899.1	43.24	48
	49901.8	44.23	49
	49904.2	45.25	50
	49906.7	46.25	51
	49908.8	47.23	52

Note:  $n^*=\{R/[\text{limit}-(\text{level value})]\}^{1/2}$

It is very much important to note that one of the most detailed papers on the uranium Rydberg spectra contains data to be reconsidered. This topic will be presented in the separate paper. Further we have calculated the energies and widths for higher members of the uranium Rydberg series (members accessed from  $32.899,79 \text{ cm}^{-1}$  level). Excitation sequence:  $6056,81+6098,10+(5880-5890) \text{\AA}$ . For  $5f^37s^2np$  ( $n=40-44$ ) levels the following results are obtained: i). For  $\varepsilon=0 \text{ V}\times\text{cm}^{-1}$ , configuration  $5f^37s^242p$ ,  $E=49877,49$  (experimental value [17]:  $49877,5$ );  $\Gamma(5f^37s^242p)=1,794\text{D-}01$ ;  $\Gamma(5f^37s^242s)=2,702\text{D-}05$ ; ii). For  $\varepsilon = 100 \text{ V}\times\text{cm}^{-1}$ ;  $\Gamma(5f^37s^242p)=1,675\text{D-}01$ ;  $\Gamma(5f^37s^242s)=5,913\text{D-}04$ . So, we have here a strong change of the autoionization resonance width at a moderately weak electric field too. At first this new spectroscopic effect has been discovered for the lanthanides atoms (see [5]). Detailed spectroscopic information about autoionization resonances is needed to optimize the excitation and ionization of the atom. An optimal scheme presumes a compromise between high excitation probability and high decay rate that determines the lower and upper boundaries for the autoionization resonances decay rate. The use of the ROD channel essentially increases the possibilities of such a compromise. It is very important for carrying out the optimized scheme of the selective photoionization sensor.

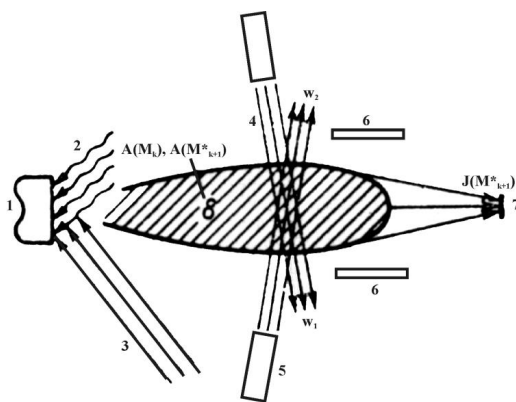
Further we present the results of numerical modelling the optimal scheme parameters of the laser photoionization sensor. As usually, the optimization procedure of the laser photoionization sensor scheme is in a searching the optimal form of the laser pulse to provide a maximum of excited particles in the gases separation scheme (naturally this is one of the possible versions). The separation process is described by the density matrix equations system (c.f. [5-8]). In figure 3 we present the results of numerical modelling the optimal form of laser pulse in the laser photoionization sensor scheme for the uranium isotopes. The following notations are used:  $\delta$  pulse + dotted line is the optimal form of the laser pulse; curves (1)  $x_1$  and (2)  $x_2$  are the populations of the ground and excited ( $n=42$ ) states. In the qualitative relation obtained data are similar to data for other  $Na$ ,  $Rb$  and  $Tm$  isotopes (see [5-10] and Refs. therein).



**Figure 3. Results of modelling the U isotopes separation process by the laser photo-ionization method ( $\delta$ +dashed – laser pulse optimal form; see text).**

The  $\delta$ -pulse provides maximum possible level of excitation (the excitation degree is about  $\sim 0,25$ ; in experiment (Letokhov, 1983) with rectangular pulse this degree was  $\sim 0,1$ ). Using  $\delta$ -pulse indeed provides a quick ionization, but the ionization yield will be less than 100% because of the sticking on intermediate levels. So, from energetic point of view, this type of ionization can be very perspective alternative to earlier proposed classical two-step and more complicated photoionization schemes (Letokhov, 1983) [2]. The similar situation and analogous conclusions are obtained for

the Tm and Yb isotope separation with the corresponding difference in the energetic and radiative characteristics data. So, one can say here about sufficiently optimal scheme of the separating highly radioactive isotopes and products of atomics energetics such as U and others. The key features of the corresponding scheme (technology) are based on the selective laser excitation of the isotopes atoms to the excited Rydberg autoionization states and further autoionization decay in a presence of a weak DC electric pulse ionization. This scheme is supposed to be very effective in solving the modern actual problems of the transmutation of radioactive elements and decreasing the energy loses in the modern atomic energetics cycles [1-6]. One should also note that the considered scheme can be easily implemented to the possible advanced scheme of the  $\gamma$  - laser on quickly decayed nuclear isomers with using laser photoionization sorting excited nuclei  $M_{k+1}^*$  with autoionization mechanism through the Rydberg states [5-7]. Figure 4 illustrates the principal moments of this scheme. It generalizes the known Goldansky-Letokhov (Goldansky & Letokhov, 1974) and other (Baldwin et al, 1981; Glushkov et al 2010) schemes and has to be more efficient especially from energetics point of view.



**Figure 4. The optimal scheme  $\gamma$  - laser on quickly decayed nuclear isomers with using laser photoionization sorting excited nuclei  $M_{k+1}^*$  with laser excitation, autoionization and electric field ionization mechanisms: 1 – target of atoms  $M_k$ ; 2- flux of slow neutrons; 3 – laser ray for evaporation of target; 4 – laser ray for the first step excitation of atoms with excited nucleus  $A(M_{k+1}^*)$ ; 5 – laser ray for second-step excitation to highly excited atomic states and Rydberg autoionization by electromagnetic field; 6 – collector system; 7 - atoms with excited nucleus  $A(M_{k+1}^*)$ ; 8 – flux of evaporated atoms.**

The laser photo ionization scheme with autoionization of the highly excited atoms (with optimal set of energetic and radiative parameters: pulse form, duration, energetic for laser and electric field pulses etc.) could provide significantly more high yield and effectiveness of the whole process of the isotope separation. It is especially worth for implementation to the possible principal scheme of  $\gamma$  -laser on quickly decayed nuclear isomers with autoionization sorting the excited atoms.

### References

- [1]. Gerasimov A. S., Kiselev G. V., Problems of radiation security of the Russian atomic energetics// Physics-Uspekhi.-2003.-Vol. 173,N7-P. 739-748.
- [2]. Letokhov V. S., Laser isotope separation// Nature.-1979.-N277.-P. 605-610.
- [3]. Basov N. G., Letokhov V. S., Optical frequency standards//Sov. Physics Uspekhi-1969.-Vol. 11.-P. 855-880 (UFN.-1968.-Vol. 96,N12).
- [4]. Ivanov L. N., Letokhov V. S. Spectroscopy of autoionization resonances in heavy elements atoms// Com. Mod. Phys. D. :At. Mol. Phys.-1985.-Vol. 4.-P. 169-184.
- [5]. Glushkov A. V., Relativistic Quantum Theory. Quantum mechanics of Atomic Systems.-Odessa: Astroprint, 2008.- 700P.
- [6]. Glushkov A V, Ivanov L N, DC strong-field Stark effect: consistent quantum-mechanical approach// Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Phys.-1993.-Vol. 26,N14.-P. L379 –386.
- [7]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Svina-renko A. A., Prepelitsa G. P., Energy Approach to Atoms in a Laser Field and Quantum Dynamics with Laser Pulses of Different Shape//In: Coherence and Ultrashort Pulsed Emission, Ed. Duarte F. J. (Intech).-2010.-P. 159-186.
- [8]. Glushkov A. V., Ambrosov S. V., Loboda A. V., Gurnitskaya E. P., Khetselius O. Y., QED calculation of heavy multicharged ions with account for correlation, radiative and nuclear effects// Recent Advances in the Theory of Chemical and Physical Systems (Springer).-2006.-Vol. 15.-P. 285-299.
- [9]. Khetselius O. Yu., Relativistic perturbation theory of the hyperfine structure for some heavy-element isotopes//Int. Journal of Quantum

Chem.-2009.-Vol. 109.-P. 3330-3335.

[10]. Khetselius O. Yu., Relativistic calculation of the hyperfine structure parameters for heavy elements and laser detection of the heavy isotopes// Phys. Scripta.-2009.-Vol. T135.-P. 014023

[11]. Khetselius O. Yu., Hyperfine structure of radium// Photoelectronics.-2005.-N14.-P. 83-85.

[12]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Malinovskaya S. V., Optics and spectroscopy of cooperative laser-electron nuclear processes in atomic and molecular systems- new trend in quantum optics// Europ. Phys. Journ. ST.-2008.-Vol. 160, Issue 1.-P. 195-204.

[13]. Malinovskaya S. V., Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Lopatkin Yu., Loboda A. V., Svinarenko A., Nikola L., Pereyagina T., Generalized energy approach for calculating electron collision cross-sections for multicharged ions in a plasma: Debye shielding model// Int. Journ. Quant. Chem.-2011.-Vol. 111,N2.-P. 288-296.

[14]. Glushkov A. V., Ivanov L. N., Ivanova E. P., Autoionization Phenomena in Atoms.-M. : Moscow State University.-1986. –P. 58-160.

[15]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Loboda A. V., Svinarenko A. A., QED approach to atoms in a laser field: Multi-photon resonances and above threshold ionization//Frontiers in Quantum Systems in Chemistry and Physics (Springer).-2008.-Vol. 18.-P. 543-560.

[16]. Glushkov A. V., Khetselius O. Yu., Lovett L., Electron- $\beta$ -Nuclear Spectroscopy of Atoms and Molecules and Chemical Bond Effect on the  $\beta$ -Decay Parameters // Advances in the Theory of Atomic and Molecular Systems Dynamics, Spectroscopy, Clusters, and Nanostructures. (Dordrecht, Springer).-2009.-Vol. 20.-P. 125-152.

[17]. Solatz R. W., May C. A., Carlson L. R. et al, Detection of Rydberg states in atomic uranium using time-resolved stepwise laser photoionization//Phys. Rev. A.-1976.-Vol. 14.-P. 1129-1148.

Стаття надійшла до редакції 01.12.2017 р.

PACS 32.80.Rm, 05.45.+b; UDC 535.42.,539.184

DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119611>

## **AN ADVANCED LASER PHOTOIONIZATION SEPARATION SCHEME FOR RADIOACTIVE ISOTOPES AND PRODUCTS OF ATOMIC ENERGETICS: URANIUM AND THE TRANSURANIUM ELEMENTS**

*V. B. Ternovsky, A. V. Glushkov, A. V. Smirnov, A. A. Kuznetsova, O. Yu. Khetselius, V. V. Buyadzhi*

Odessa State Environmental University, L'vovskaya, 15, Odessa, 65016, Ukraine

E-mail: [ternovskybv@gmail.com](mailto:ternovskybv@gmail.com)

### **Summary**

The aim of the work is to develop and present a new effective approach to problem of detection and separation radioactive isotopes (radionuclides), which is based on a new physical principles and to carry put computing of spectroscopic parameters and modelling the optimal separation scheme for the U and transuranium isotopes.

We present an advanced, optimal laser-photoionization scheme of separating heavy radioactive isotopes and nuclear isomers, in particular, the uranium isotopes and the transuranium elements. The advanced scheme is based on the selective laser excitation of the isotope atom into the highly-excited Rydberg states and further electric field ionization mechanism. Some preliminary data for the autoionization resonance characteristics for U and transuranium isotopes are obtained. An appreciable dependence of the reorientation decay velocity of the autoionization resonances at an electric field is analyzed. Two autoionization resonances decay channels are predicted as well as the effect of the giant autoionization resonance width broadening in the relatively weak electric field for uranium and transuranium elements. Using the optimal laser action model and density matrices formalism it has been carried out modelling the optimal scheme of the U isotopes separation. It is presented The optimal scheme  $\gamma$  - laser on quickly decayed nuclear isomers with using laser photoionization sorting excited nuclei with autoionization and electric field ionization mechanisms.

**Keywords:** laser photoionization method, highly radioactive isotopes, new spectroscopy of autoionization resonances for uranium, optimal scheme of isotope laser separation

PACS 32.80.Rm, 05.45.+b; УДК 535.42.,539.184  
DOI <http://dx.doi.org/10.18524/1815-7459.2017.4.119611>

## **УДОСКОНАЛЕНА ЛАЗЕРНО-ФОТОІОНІЗАЦІЙНА СХЕМА ПОДІЛЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ ІЗОТОПІВ ТА ПРОДУКТІВ АТОМНОЇ ЕНЕРГЕТИКИ: УРАН ТА ТРАНСУРАНОВІ ЕЛЕМЕНТИ**

*В. Б. Терновський, О. В. Глушков, А. В. Смірнов, Г. А. Кузнецова, О. Ю. Хецеліус, В. В. Буяджи*

Одеський державний екологічний університет, Львівська 15, Одеса, 65016  
E-mail: [ternovskybv@gmail.com](mailto:ternovskybv@gmail.com)

### **Реферат**

Метою роботи є розробка та представлення нового ефективного підходу до проблеми детектування та розділення радіоактивних ізотопів (радіонуклідів), що базується на нових фізичних принципах, та проведенні обчислень спектроскопічних параметрів та моделювання параметрів оптимальної схеми поділення для урана та трансуранових ізотопів.

Запропонована нова, оптимальна схема лазерно-фотоіонізаційного поділення важких радіоактивних ізотопів і ядерних ізомерів, зокрема ізотопів урану і трансуранових елементів. Покращена схема заснована на селективному лазерному збудженні атомів радіоактивного ізотопу у високоезбудженні рідбергівські стани і автоіонізаційному механізмі іонізації в присутності слабкого електричного поля. Отримані деякі попередні дані для енергій автоіонізаційних резонансів для U і трансуранових ізотопів. Представлена залежність швидкості розпаду резонансів в слабкому постійному електричному полі. Прогнозуються два канали розпаду автоіонізаційних станів і передбачений ефект гігантського розширення автоіонізаційних резонансів в спектрі урану у відносно слабкому електричному полі, що вказує на принципово нову спектроскопію автоіонізаційних станів для урану і трансуранових елементів. Використовуючи оптимальну модель лазерного впливу і формалізм матриць густини, проведено моделювання оптимальної схеми поділу ізотопів U. Представлена оптимальна схема гамма-лазера на ядерних ізомерах, що швидко розпадаються, з використанням лазерно-фотоіонізаційної схеми поділення (сортування) збуджених ядер і подальшої автоіонізації в присутності електричного поля.

**Ключові слова:** лазерний фотоіонізаційний метод, високо радіоактивні ізотопи, нова спектроскопія автоіонізаційних резонансів для урана, оптимальна схема лазерного поділення ізотопів



---

## ІНФОРМАЦІЯ ДЛЯ АВТОРІВ. ВИМОГИ ДО ОФОРМЛЕННЯ СТАТЕЙ У ЖУРНАЛ

Журнал «Сенсорна електроніка і мікросистемні технології» публікує статті, короткі повідомлення, листи до Редакції, а також коментарі, що містять результати фундаментальних і прикладних досліджень, за наступними напрямками:

1. Фізичні, хімічні та інші явища, на основі яких можуть бути створені сенсори
2. Проектування і математичне моделювання сенсорів
3. Сенсори фізичних величин
4. Оптичні, оптоелектронні і радіаційні сенсори
5. Акустoeлектронні сенсори
6. Хімічні сенсори
7. Біосенсори
8. Наносенсори (фізика, матеріали, технологія)
9. Матеріали для сенсорів
10. Технологія виробництва сенсорів
11. Сенсори та інформаційні системи
12. Мікросистемні та нанотехнології (MST, LIGA-технологія та ін.)
13. Деградація, метрологія і сертифікація сенсорів

Журнал публікує також замовлені огляди з актуальних питань, що відповідають його тематиці, поточну інформацію – хроніку, персоналії, платні рекламні повідомлення, оголошення щодо конференцій.

Основний текст статті повинен відповідати вимогам Постанови Президії ВАК України від 15.01.2003 р. №7-05/1 (Бюлетень ВАК України 1, 2003 р.) і бути структурованим. Матеріали, що надсилаються до Редакції, повинні бути написані з максимальною ясністю і чіткістю викладу тексту. У поданому рукописі повинна бути обґрунтована актуальність розв'язуваної задачі, сформульована мета дослідження, міститися оригінальна частина і висновки, що забезпечують розуміння суті отриманих результатів і їх новизну. Автори повинні уникати необґрунтованого введення нових термінів і вузькопрофільних жаргонних висловів.

Редакція журналу просить авторів при направленні статей до друку керуватися наступними правилами:

1. Рукописи повинні надсилатися у двох примірниках українською, або російською, або англійською мовою і супроводжуватися файлами тексту і малюнків на CD. Рукописи, які пропонуються авторами з України або країн СНД до видання англійською мовою обов'язково доповнюються україномовною або російськомовною версією. Електронна копія може бути надіслана електронною поштою.

2. Прийнятні формати тексту: MS Word (rtf, doc).

3. Прийнятні графічні формати для рисунків: EPS, TIFF, BMP, PCX, WMF, MS Word і MS Graf, JPEG. Рисунки створені за допомогою програмного забезпечення для математичних і статистичних обчислень, повинні бути перетворені до одного з цих форматів.

4. На статті авторів з України мають бути експертні висновки про можливість відкритого друку.

### **Рукописи надсилати за адресою:**

Лепіх Ярослав Ілліч, Заст. гол. редактора,  
Одеський національний університет імені І. І. Мечникова, МННФТЦ (НДЛ-3),  
вул. Дворянська, 2, Одеса, 65082, Україна.  
**Телефон / факс** +38(048) 723-34-61,  
**E-mail:** semst-journal@onu.edu.ua,  
**http://semst.onu.edu.ua**

*Здійснюється анонімне рецензування рукописів статей.*

### Правила підготовки рукопису:

Рукописи повинні супроводжуватися офіційним листом, підписаним керівником установи, де була виконана робота. Це правило не стосується робіт представлених авторами із закордону чи міжнародними групами авторів.

Авторське право переходить Видавцю.

Титульний аркуш:

1. PACS і Універсальний Десятковий Код Класифікації (УДК) (для авторів із країн СНД) – у верхньому лівому куті. Допускається декілька відділених комами кодів. Якщо ніякі коди класифікації не позначені, код(и) буде(уть) визначено Редакційною Колегією.

2. Назва роботи (по центру, прописними літерами, шрифт 14pt, жирно).

3. Прізвище (-а) автора(-ів) (по центру, шрифт 12pt).

4. Назва установи, повна адреса, телефони і факси, e-mail для кожного автора, нижче, через один інтервал, окремим рядком (по центру, шрифт 12pt).

5. Анотація: до 1000 символів.

6. Ключові слова: їхня кількість не повинна перевищувати восьми слів. В особливих випадках можна використовувати терміни з двома — чи трьома словами. Ці слова повинні бути розміщені під анотацією і написані тією самою мовою.

П.п. 2,3,4,5,6 послідовно викласти українською, англійською і російською мовами.

Для авторів з закордону, які не володіють українською або російською мовами, пп. 2-5 викладаються англійською мовою.

7. До кожного примірника статті додаються реферати українською / російською (в залежності від мови оригіналу статті), та англійською мовами (кожен реферат на окремому аркуші). Особливу увагу слід приділяти написанню резюме статті англійською мовою. Для цього доцільно користуватися послугами кваліфікованих спеціалістів-лінгвістів з подальшим науковим редагуванням тексту автором(-ами). Перед словом «реферат» необхідно написати повну назву статті відповідною мовою, УДК, прізвища та ініціали авторів, назви установ. Реферат обсягом 200-250 слів має бути структурованим: мета (чітко сформульована), методи дослідження, результати дослідження (стисло),

узагальнення або висновки. Після тексту реферату з абзацу розміщуються ключові слова.

8. Текст статті повинен бути надрукований через 1,5 інтервали, на білому папері формату А4. Поля: зліва - 3см, справа - 1,5см, вверху і знизу - 2,5см. Шрифт 12pt. Підзаголовки, якщо вони є, повинні бути надруковані прописними літерами, жирно.

Рівняння повинні бути введені, використовуючи MS Equation Editor або MathType. Роботи з рукописними вставками не приймаються. Таблиці повинні бути представлені на окремих аркушах у форматі відповідних текстових форматів (див. вище), чи у форматі тексту (з колонками, відділеними інтервалами, комами, крапкам з комою, чи знаками табулювання).

9. У кінці тексту статті указати прізвища, імена та по батькові усіх авторів, поштову адресу, телефон, факс, e-mail (для кореспонденції).

10. Список літератури повинен бути надрукований через 1,5 інтервали, з літературою, пронумерованою в порядку її появи в тексті. Бібліографія друкується лише латиницею (кирилиця подається в транслітерації). Порядок оформлення літератури повинен відповідати вимогам ВАК України, наприклад:

[1]. I.M. Cidilkov skii. Elektrony i dyrki v poluprovodnikah. Nauka, M. 450 s. (1972).

[2]. J.A. Hall. Imaging tubes. Chap. 14 in The Infrared Handbook, Eds. W.W. Wolfe, G.J. Zissis, pp. 132-176, ERIM, Ann Arbor, MI (1978).

[3]. N. Blutzer, A.S. Jensen. Current readout of infrared detectors // Opt. Eng., 26(3), pp. 241-248 (1987).

11. Підписи до рисунків і таблиць повинні бути надруковані в рукописі з двома пробілами після списку літератури. Виносок, якщо можливо, бажано уникати.

Приймаються тільки високоякісні рисунки. Написи і символи повинні бути надруковані усередині рисунку. Негативи, слайди, і діапозитиви не приймаються.

Кожен рисунок повинен бути надрукований на окремому аркуші і мати розмір, що не перевищує 160x200 мм. Для тексту на рисунках використовуйте шрифт 10pt. Одиниці виміру повинні бути позначені після коми (не в круглих дужках). Усі рисунки повинні бути пронуме-

---

ровані в порядку їх появи в тексті, з частинами позначеними як (а), (б), і т.д. Розміщення номерів рисунків і напису усередині малюнків не дозволяються. Зі зворотної сторони, напишіть олівцем назву, прізвище(а) автора(-ів), номер малюнка і позначте верх стрілкою.

Фотографії повинні бути оригінальними. Кольоровий друк можливий, якщо його вартість сплачується авторами чи їх спонсорами.

12. Стаття має бути підписана автором (усіма авторами) з зазначенням дати на останній сторінці.

Автори несуть повну відповідальність за бездоганне мовне оформлення тексту, особливо за правильну наукову термінологію (її слід звіряти за фаховими термінологічними словниками).

13. Датою надходження статті вважається день, коли до редколегії надійшов остаточний варіант статті після рецензування.

Після одержання коректури статті автор повинен виправити лише помилки (чітко, синьою або чорною ручкою неправильно закреслити, а поряд з цим на полі написати правильний варіант) і терміново відіслати статтю на адресу редколегії електронною поштою.

Підпис автора у кінці статті означає, що автор передає права на видання своєї статті редакції. Автор гарантує, що стаття оригінальна; ні стаття, ні рисунки до неї не були опубліковані в інших виданнях.

Відхилені статті не повертаються.

---

# INFORMATION FOR AUTHORS

## THE REQUIREMENTS ON PAPERS PREPARATION

Journal «Sensor Electronics and Microsystems Technologies» publishes articles, brief messages, letters to Editors, and comments containing results of fundamental and applied researches, on the following directions:

1. Physical, chemical and other phenomena, as the bases of sensors
2. Sensors design and mathematical modeling
3. Physical sensors
4. Optical, optoelectronic and radiation sensors
5. Acoustoelectronic sensors
6. Chemical sensors
7. Biosensors
8. Nanosensors (physics, materials, technology)
9. Sensor materials
10. Sensors production technologies
11. Sensors and information systems
12. Microsystems and nano-technologies (MST, LIGA-technologies et al.)
13. Sensor's degradation, metrology and certification

The journal publishes the custom-made reviews on actual questions appropriate to the mentioned subjects, current information – chronicle, special papers devoted to known scientists, paid advertising messages, conferences announcements.

The basic article text should meet the SAC Ukraine Presidium Decree requirements from 15.01.2003 № 7-05/1 (SAC Bulletin № 1, 2003) and be structured. The materials sent to Editors, should be written with the maximal text presentation clearness and accuracy. In the submitted manuscript the actuality of problem should be reflected, the purpose of the work should be formulated. It must contain an original part and conclu-

sions providing the received results essence and their novelty understanding. The authors should avoid the new terms and narrowprofile jargon phrase unreasonable introduction.

Journal Edition asks authors at a direction of articles in a print to be guided by the following rules:

1. Manuscripts should be submitted in duplicate in Ukrainian, English, or Russian, a hard copy and supplemented with a text file and figures on a CD. Manuscripts which are offered by authors from Ukraine or CIS countries to the edition in English are necessarily supplemented by Ukrainian or Russian version. An electronic copy may be submitted by e-mail.

2. Acceptable text formats: MS Word (rtf, doc).

3. Acceptable graphic formats for figures: EPS, TIFF, BMP, PCX, CDR, WMF, MS Word and MS Graf, JPEG. Figures created using software for mathematical and statistical calculations should be converted to one of these formats.

4. For articles of authors from Ukraine there should be expert conclusions about an opportunity of an open print.

### **Manuscripts should be sent to:**

Lepikh Yaroslav Illich, The Vice Editor, Odessa National I. I. Mechnikov University, ISEPTC (RL-3), str. Dvoryanskaya, 2, Odessa, 65082, Ukraine.

**Phone/fax** +38(048) 723-34-61,

**E-mail:** semst-journal@onu.edu.ua,

**http://**semst.onu.edu.ua

*Manuscripts of articles anonymous reviewing is carried out*

---

### **The manuscript preparation rules:**

The manuscripts should be supplemented with the Official letter signed by a chief manager of the institution where the work was performed. This rule does not apply to papers submitted by authors from abroad or international groups of authors.

Copyright transfer to the Publisher.

Title Page:

1. PACS and Universal Decimal Classification code (for authors from CIS) in the top left corner. Several comma-separated codes are allowed. If no classification codes are indicated, the code(s) will be assigned by the Editorial Board.

2. Title of the paper (central, capital, bold, 14pt).

3. Name (-s) of the author(-s) below, in one space (central, normal face, 12pt).

4. Name of affiliated institution, full address, phone and fax numbers, e-mail addresses (if available) for each author below, in one space (central, normal face, 12pt).

5. Abstract: up to 1000 characters.

6. Keywords: its amount must not exceed eight words. In the specific cases it is acceptable to use two- or three-word terms. These words must be placed under the abstract and written in the same language.

Items 2,3,4,5,6 must be presented in series in Ukrainian, English and Russian languages.

For authors from abroad which do not know Ukrainian or Russian languages, items 2-5 may be presented only in English.

7. To each copy of the article abstracts in Ukrainian / Russian (depending on language of the original all authors of article), and the English language are applied (each abstract on a separate sheet). The special attention should be given to the writing of the article summary in English. For this purpose it is expedient to use the qualified experts - linguists with the further scientific editing the text by the author (-s). Before the word "abstract" it is necessary to write the full article name by the appropriate language, UDC, surnames and the initials of the authors, names of affiliated institutions. The abstract in volume of 200-250 words must be structured: the purpose (precisely formulated),

research methods and results (shortly), generalizations or conclusions. After the text of the abstract from the item key words are placed.

8. Article text should be printed 1,5-spaced on white paper A4 format with a 12pt, margins: left – 3sm, right – 1,5, upper and lower – 2,5sm. Titles of the sections if it is present should be typed bold, capitals.

Equations should be entered using MS Equation Editor or MathType. Papers with handwritten equations are not accepted. Notations should be defined when the first appearing in the text.

Tables should be submitted on separate pages in the format of appropriate text formats (see above), or in the text format (with columns separated by interval, commas, or tabulation characters).

9. At the article text end one must indicate surnames, names and patronymics of all authors, the mail address, the phone, a fax, e-mail (for the correspondence).

10. List of references should be 1,5-spaced, with references numbered in order of their appearance in the text. The bibliography is printed only by the roman type (cyrillics represents in transliteration).

The literature registration order should conform to DAS of Ukraine requirements, for example:

[1]. I.M. Cidilkov skii. *Elektrony i dyrki v poluprovodnikah*. Nauka, M. 450 s. (1972).

[2]. J.A. Hall. Imaging tubes. Chap. 14 in *The Infrared Handbook*, Eds. W.W. Wolfe, G.J. Zissis, pp. 132-176, ERIM, Ann Arbor, MI (1978).

[3]. N. Blutzer, A.S. Jensen. Current readout of infrared detectors // *Opt. Eng.*, 26(3), pp. 241-248 (1987).

11. Figures and tables captions should be printed in the manuscript double-spaced after the list of references. Footnotes should be avoided if possible.

Only high-quality pictures can be accepted. Inscriptions and symbols should be printed inside picture. Negatives, and slides are not accepted.

Each figure should be printed on a separate page and have a size not exceeding 160x200 mm.



---

For text inside figures, use 10pt. Measurement units should be indicated after a comma (not in blankets). All figures are to be numbered in order of its appearance in the text, with sections denoted as (a), (b), etc. Placing the figure numbers and captions inside figures is not allowed. On the backside, write with a pencil the paper title, author(s) name(s) and figure number, and mark the topside with an arrow.

Photographs should be submitted as original prints. Color printing is possible if its cost is covered by the authors or their sponsors.

12. The article must be signed by author (all authors) with the date indication on the last page.

Authors bear full responsibility for irreproachable language make out of the text, especially for a correct scientific terminology (it should be verified

under terminological dictionaries of the appropriate speciality).

13. The date of article acceptance is that one when the final variant comes to the publisher after a prepublication review.

After obtaining the proof sheet the author should correct mistakes (clearly cancel incorrect variant with blue or black ink and put the correct variant on border) and send urgently the revised variant to the editor by e-mail.

Author's signature at the article end vouches that author grants a copyright to the publisher. Author vouches that the work has not been published elsewhere, either completely, or in part and has not been submitted to another journal.

Not accepted manuscripts will not be returned.

---

Комп'ютерне верстання – О. І. Карлічук

Підп. до друку 20.12.2017. Формат 60×84/8.  
Ум.-друк. арк. 5,81. Тираж 300 пр. Зам. № 1710.

**Видавець і виготовлювач**  
**Одеський національний університет імені І. І. Мечникова**

Свідоцтво суб'єкта видавничої справи ДК № 4215 від 22.11.2011 р.

Україна, 65082, м. Одеса, вул. Єлісаветинська, 12  
Тел.: (048) 723 28 39