

СОДЕРЖАНИЕ

Том 13, номер 5, 2022

ФИЗИКА ДЕЛЕНИЯ

Измерение кумулятивных сечений образования продуктов деления при облучении ^{232}Th ядрами ^3He средних энергий

*А. А. Смирнов, М. Н. Герман, В. А. Загрядский, К. А. Маковеева,
Т. Ю. Маламут, В. И. Новиков, В. Н. Унежеев*

421

ПЕРСПЕКТИВНЫЕ КОНСТРУКЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ

Применение метода радиолюминографии для анализа распределения малых количеств трития в электронно-индуцированных дефектах перспективных материалов термоядерных реакторов

*Н. П. Бобырь, Т. А. Анфимова, Б. В. Иванов, А. С. Аникин, И. Г. Лесина,
А. А. Семенов, Н. Е. Забирова, А. С. Крюкова, А. Н. Букин, А. В. Лизунов*

428

Оптимизация процедур изготовления композитных тонких пленок на основе перовскитных нанокристаллов CsPbBr_3 для применения в светодиодах и фотоприемниках нового поколения

А. А. Кныш, А. А. Ткач, Д. Гулевич, И. Набиев, П. С. Самохвалов

439

ИНЖЕНЕРНОЕ ПРОЕКТИРОВАНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКОЙ АППАРАТУРЫ

Установка для диагностики физических процессов в разряднике с оптическим управлением

С. Г. Давыдов, В. О. Ревазов, В. П. Селезнёв, М. С. Скоробогатых, Р. Х. Якубов

446

Оборудование и аппаратура для изучения вакуумных свойств материалов и высокочувствительного контроля герметичности газонаполненных разрядников

С. А. Бушин, С. Г. Давыдов, В. О. Ревазов, Р. Х. Якубов

451

УСКОРИТЕЛИ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ДЛЯ ЯДЕРНЫХ ТЕХНОЛОГИЙ

Идентификация ионов на магнитном спектрометре фрагм

*Б. М. Абрамов, Ю. А. Бородин, С. А. Булычёв, И. А. Духовской, В. В. Куликов,
А. А. Куликовская, А. П. Крутенкова, М. А. Мартемьянов,
М. А. Мацюк, Е. Н. Турдакина*

460

Моделирование соленоида для фокусировки пучка легких ионов

*И. В. Кильметова, А. В. Козлов, Т. В. Кулевой, Ю. Б. Стасевич,
А. В. Зиятдинова, П. А. Федин, К. Е. Прянишников*

466

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

Открытие субпуассоновской статистики световых фотонов в сцинтилляторах, которое не состоялось

В. В. Самедов

473

Влияние вспомогательного разряда на электрофизические характеристики импульсных цезиевых источников излучения

С. В. Гавриш

482

Поиск стандартного бозона Хиггса и тяжелого резонанса в канале распада $WW^{(*)} \rightarrow (e\nu e\nu + \mu\nu\mu\nu)$ в эксперименте ATLAS

А. А. Гаврилюк, Е. Н. Рамакоти, И. И. Цукерман

489

Омические потери напряжения на прозрачных тонкопленочных оксидных электродах электрохромных модулей, осажденных из плазмы магнетронного разряда, при их окрашивании

К. С. Новикова, В. В. Кравченко, Д. П. Княжев, Д. Д. Бернт, А. А. Писарев

494

РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ

Доза облучения персонала в 2020 г.

В. В. Костерев, А. Г. Цовьянов, А. Г. Сивенков, В. Е. Журавлева

501

МЕДИЦИНСКАЯ ФИЗИКА И БИОФИЗИКА

Биораспределение ^{213}Bi –металлотионеина и ^{213}Bi –IgG в организме интактных мышей

В. М. Петриев, В. К. Тищенко, П. В. Шегай, С. А. Иванов, А. Д. Каприн

510

Неантропоморфный водный динамический фантом для протонной терапии сканирующим пучком

М. А. Белихин, А. А. Пряничников, А. П. Черняев, А. Е. Шемяков

515

Contents

Vol. 13, No. 5, 2022

Physics of Fission

Measurement of Cumulative Cross Sections for ^{232}Th Fission Products upon Irradiation with Medium-Energy ^3He Nuclei

*A. A. Smirnov, M. N. German, V. A. Zagryadskii, K. A. Makoveeva,
T. Yu. Malamut, V. I. Novikov, V. N. Unezhev* 421

Promising Construction Materials

Application of the Radioluminography Method for the Analysis of the Distribution of Small Amounts of Tritium in Electronic-Induced Defects in Perspective Materials for Fusion Reactors

*N. P. Bobyr, T. A. Anfimova, B. V. Ivanov, A. S. Anikin, I. G. Lesina, A. A. Semenov,
N. E. Zabirowa, A. S. Kryukova, A. N. Bukin, and A. V. Lizunov* 428

Optimization of CsPbBr_3 Perovskite-Based Composite Thin Film Fabrication Processes for Use in New-Generation Light Emission Diodes and Photodetectors

A. A. Knysh, A. A. Tkach, D. Gulevich, L. Nabiev, and P. S. Samokhvalov 439

Engineering Design of Nuclear Physics Equipment

Installation for Diagnostics of Physical Processes in a Laser-Triggered Switch

S. G. Davydov, V. O. Revazov, V. P. Seleznev, M. S. Skorobogatykh, and R. Kh. Yakubov 446

Equipment and Apparatus for Studying the Vacuum Properties of Materials and Highly Sensitive Control of the Leak Detection of Gas Filled Spark Gaps

S. A. Bushin, S. G. Davydov, V. O. Revazov, and R. Kh. Yakubov 451

Interaction of Plasmas, Particle Beams, and Radiation with Matter

Ion Identification Using a FRAGM Magnetic Spectrometer

*B. M. Abramov, Yu. A. Borodin, S. A. Bulychjov, I. A. Dukhovskoy, V. V. Kulikov, A. A. Kulikovskaya,
A. P. Krutenkova, M. A. Martemianov, M. A. Matsyuk, and E. N. Turdakina* 460

Designing a Solenoid for a Light Ion Beam Focusing

*I. V. Kilmetova, A. V. Kozlov, T. V. Kulevoy, Yu. B. Stasevich, A. V. Ziiatdinova,
P. A. Fedin, and K. E. Pyianishnikov* 466

Charged Particle Accelerators for Nuclear Technologies

Discovery of Sub-Poissonian Statistics of Light Photons in Scintillators That Did Not Take Place

V. V. Samedov 473

Influence of Auxiliary Discharge on the Electrophysical Characteristics of Cesium Pulsed Radiation Sources

S. V. Gavrish 482

Search for the Standard Model Higgs Boson and a Heavy Resonance in the $WW^{(*)} \rightarrow (e\bar{\nu}e + \mu\nu\mu)$ Decay Channel in the ATLAS Experiment

A. A. Gavriluk, E. N. Ramakoti, and I. I. Tsukerman 489

OHMIC Losses on Magnetron-Sputtered PVD Thin-Film TCO Electrodes
of the Electrochromic Modules During Their Tinting

K. S. Novikova, V. V. Kravchenko, D. P. Knyazhev, D. D. Berni, and A. A. Pisarev

494

Radiation Safety

Personnel Radiation Dose in 2020

V. V. Kosterev, A. G. Tsovyanov, A. G. Sivenkov, and V. E. Zhuravleva

501

Medical Physics and Biophysics

Biodistribution of ^{213}Bi –Metallothionein and ^{213}Bi –IgG in Intact Mice

V. M. Petriev, V. K. Tishchenko, P. V. Shegai, S. A. Ivanov, and A. D. Kaprin

510

Nonanthropomorphic Dynamic Water Phantom for Spot Scanning Proton Therapy

M. A. Belikhin, A. A. Pryanichnikov, A. P. Chernyaev, and A. E. Shemyakov

515

ИЗМЕРЕНИЕ КУМУЛЯТИВНЫХ СЕЧЕНИЙ ОБРАЗОВАНИЯ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ^{232}Th ЯДРАМИ ^3He СРЕДНИХ ЭНЕРГИЙ

© 2022 г. А. А. Смирнов^а, *, М. Н. Герман^а, В. А. Загрядский^а,
К. А. Маковеева^а, Т. Ю. Маламут^а, В. И. Новиков^а, В. Н. Унежев^а

^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт” Москва, 123182 Россия

*E-mail: alexandersmirnov601@gmail.com

Поступила в редакцию 20.04.2022 г.

После доработки 17.05.2022 г.

Принята к публикации 23.05.2022 г.

Статья посвящена измерению кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th в области энергий ядер ^3He 39 – 58 МэВ. Измерения выполнены с помощью активационной методики и техники “стопки фольг”. Впервые измерены 18 кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th ядрами ^3He с периодами полураспада от 1 (^{112}Pd , $T_{1/2} = 21$ ч) до 64 (^{95}Zr , $T_{1/2} = 64$ д) дней. Полученные результаты, являясь фундаментальными константами, могут дополнить существующие библиотеки ядерных данных.

Ключевые слова: ^{232}Th , циклотрон, кумулятивные сечения, облучение ядрами ^3He , продукты деления ^{232}Th

DOI: 10.56304/S2079562922030514

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время для получения радионуклидов медицинского назначения широко используют ускорители заряженных частиц. Наиболее часто в качестве ускоренных частиц используют протоны. На циклотроне У-150 Национального исследовательского центра “Курчатовский институт” для наработки радионуклидов применяют также дейтроны, ядра ^3He и ^4He . Радионуклиды нарабатывают в мишенях, как в результате реакций активации, так и в результате реакции деления (скалывания). Информация об экспериментальных кумулятивных сечениях образования осколков деления важна, как для оценки производительности получения того, либо иного целевого радионуклида, так и для оценки количественного и качественного состава сопутствующих радионуклидных примесей. Для наработки α -эмиттеров (^{225}Ac , ^{223}Ra , ^{230}U), применяемых в иммунотерапии, облучают протонами мишени из металлического тория или его соединений. Данные о кумулятивных сечениях образования осколков деления при облучении мишеней из тория протонами приведены в работах [1–3]. При облучении тория ядрами ^3He радионуклид ^{230}U может быть наработан как в результате прямой реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 5n)^{230}\text{U}$ так и в результате наработки и распада ^{230}Pa : $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$. Данные об экспериментальных кумулятивных сечениях

образования продуктов деления при облучении тория ядрами ^3He в литературе отсутствуют. Эти данные представляют интерес для оценки эффективности радиохимического выделения и очистки от продуктов деления целевого радионуклида ^{230}U и ряда других сопутствующих радионуклидов медицинского назначения: ^{99}Mo , ^{103}Ru и т.д.

Учитывая выше сказанное, и с целью получения новых ядерных данных в настоящей работе впервые измерены кумулятивные сечения образования ряда осколков деления при облучении тория ядрами ^3He средних энергий 39–58 МэВ.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Для измерения кумулятивных сечений образования продуктов деления при облучении тория ядрами ^3He использовалась активационная методика и техника “стопки фольг”. Кратко суть методики состояла в следующем. Мишени из порошка диоксида тория, нанесенного методом седиментации на подложки из алюминия, собирали в единую стопку, которую облучали ядрами ^3He с энергией 58 МэВ на циклотроне У-150 Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”. После облучения и выдержки в мишенях измеряли активности продуктов деления. По измеренным активностям из уравнения активации определяли кумулятивные сечения про-

Таблица 1. Характеристики радионуклидов, использованные для определения кумулятивных сечений

№ п/п	Радионуклид	$T_{1/2}$, дней	E_γ , кэВ	Квантовый выход, %	Цепочки короткоживущих предшественников образования нуклида из [4]
1	^{95}Zr	64.03	724.2	44.3 [5]	$^{95}\text{Kr} \rightarrow ^{95}\text{Rb} \rightarrow ^{95}\text{Sr} \rightarrow ^{95}\text{Y} \rightarrow ^{95}\text{Zr}$
2	^{96}Nb	0.97	778.2	0.965 [6]	$^{96}\text{Rb} \rightarrow ^{96}\text{Sr} \rightarrow ^{96}\text{Y} \rightarrow ^{96}\text{Zr} \rightarrow ^{96}\text{Nb}$
3	^{99}Mo	2.75	140.5	89* [7]	$^{99}\text{Rb} \rightarrow ^{99}\text{Sr} \rightarrow ^{99}\text{Y} \rightarrow ^{99}\text{Zr} \rightarrow ^{99}\text{Nb} \rightarrow ^{99}\text{Mo}$
4	^{103}Ru	39.25	497.1	91 [8]	$^{103}\text{Zr} \rightarrow ^{103}\text{Nb} \rightarrow ^{103}\text{Mo} \rightarrow ^{103}\text{Tc} \rightarrow ^{103}\text{Ru}$
5	^{105}Rh	1.47	319.2	16.9 [9]	$^{105}\text{Nb} \rightarrow ^{105}\text{Mo} \rightarrow ^{105}\text{Tc} \rightarrow ^{105}\text{Ru} \rightarrow ^{105}\text{Rh}$
6	^{111}Ag	7.45	342.1	6.7 [10]	$^{111}\text{Ru} \rightarrow ^{111}\text{Rh} \rightarrow ^{111}\text{Pd} \rightarrow ^{111\text{m}}\text{Ag} \rightarrow ^{111}\text{Ag}$
7	^{112}Pd	0.88	617.4	43** [11]	$^{112}\text{Ru} \rightarrow ^{112}\text{Rh} \rightarrow ^{112}\text{Pd}$
8	^{115}Cd	2.23	336.2	46 [12]	$^{115}\text{Pd} \rightarrow ^{115}\text{Ag} \rightarrow ^{115}\text{Cd}$
9	^{122}Sb	2.7	564	70.7 [13]	$^{122\text{m}}\text{Sb} \rightarrow ^{122}\text{Sb}$
10	^{124}Sb	60.2	602.7	97.8 [14]	$^{124\text{m}}_2\text{Sb} \rightarrow ^{124\text{m}}_1\text{Sb} \rightarrow ^{124}\text{Sb}$
11	^{126}Sb	12.4	666.3	99.6 [15]	$^{126}\text{Cd} \rightarrow ^{126}\text{In} \rightarrow ^{126}\text{Sn} \rightarrow ^{126\text{m}}\text{Sb} \rightarrow ^{126}\text{Sb}$
12	^{127}Sb	3.85	685.7	36.8 [16]	$^{127}\text{Cd} \rightarrow ^{127}\text{In} \rightarrow ^{127}\text{Sn} \rightarrow ^{127}\text{Sb}$
13	^{131}I	8.02	364.5	81.5 [17]	$^{131}\text{In} \rightarrow ^{131}\text{Sn} \rightarrow ^{131}\text{Sb} \rightarrow ^{131}\text{Te} \rightarrow ^{131}\text{I}$
14	^{132}Te	3.26	228.2	88 [18]	$^{132}\text{In} \rightarrow ^{132}\text{Sn} \rightarrow ^{132}\text{Sb} \rightarrow ^{132\text{m}}\text{Sb} \rightarrow ^{132}\text{Te}$
15	^{136}Cs	13.16	818.5	99.7 [19]	$^{136\text{m}}\text{Cs} \rightarrow ^{136}\text{Cs}$
16	^{140}Ba	12.75	537.3	24.4 [20]	$^{140}\text{I} \rightarrow ^{140}\text{Xe} \rightarrow ^{140}\text{Cs} \rightarrow ^{140}\text{Ba}$
17	^{141}Ce	32.5	145.4	48.4 [21]	$^{141}\text{I} \rightarrow ^{141}\text{Xe} \rightarrow ^{141}\text{Cs} \rightarrow ^{141}\text{Ba} \rightarrow ^{141}\text{La} \rightarrow ^{141}\text{Ce}$
18	^{143}Ce	1.375	293.3	42.8 [22]	$^{143}\text{Xe} \rightarrow ^{143}\text{Cs} \rightarrow ^{143}\text{Ba} \rightarrow ^{143}\text{La} \rightarrow ^{143}\text{Ce}$

* Энергия гамма-квантов и квантовый выход соответствуют дочернему $^{99\text{m}}\text{Tc}$.** Энергия гамма-квантов и квантовый выход соответствуют дочернему ^{112}Ag .

дуктов деления. Время выдержки для каждого осколка значительно превышало время распада его короткоживущих предшественников после окончания облучения. Поэтому при приведении измеренной активности осколков к концу облучения было сделано допущение о полном распаде предшественников к моменту окончания облучения.

Метод седиментации описан в [23]. Полученные с помощью этого метода мишени представляли собой механически устойчивые и визуально равномерные по толщине слои диоксида тория с толщинами 7–11 мг/см². Диаметр нанесенного пятна составлял 20 мм. Мишени не изменяли свой первоначальный вид после облучения пучком заряженных частиц.

Стопка фольг содержала 11 мишеней. Между мишенями в стопке размещали замедлители заряженных частиц в виде алюминиевых фольг с толщинами 9 и 30 мкм. Суммарная толщина мишеней на подложках и замедлителей обеспечивала торможение ядер ^3He в стопке со стартовых 58 до 39 МэВ. Соответствие энергии ядер ^3He положению конкретной мишени в стопке и, следовательно, ее активности определяли по программе SRIM [24].

Стопку устанавливали в мишенную камеру циклотрона и облучали пучком ядер ^3He . Энергия ядер ^3He задавалась параметрами циклотрона и составляла 58 ± 1 МэВ. Облучение проводили при среднем токе 0.1 мкА до достижения величины суммарного заряда ~ 0.3 мкА ч. Интегральный поток ядер ^3He , падающих на мишень определяли с помощью интегратора тока.

После облучения и выдержки определяли активности продуктов деления. В аппаратурных гамма-спектрах было идентифицировано 18 радионуклидов. Характеристики радионуклидов, использованные для определения их активностей, приведены в табл. 1. Активность ^{99}Mo определяли по активности дочернего $^{99\text{m}}\text{Tc}$, активность ^{112}Pd по активности дочернего ^{112}Ag . Измерения площадей пиков полного поглощения гамма-квантов проводили с помощью гамма-спектрометра ORTEC GEM серии 35P4 с детектором из сверхчистого германия. Мишени во время измерений устанавливали на расстоянии 6–40 см над поверхностью детектора в зависимости от загрузки спектрометра. Мертвое время при измерениях не превышало 5%. Энергетическую зависимость эффективности регистрации гамма-квантов детек-

Таблица 2. Кумулятивные сечения образования продуктов деления ^{232}Th при облучении ядрами ^3He , мб

№ п/п	E , МэВ	39.2 ± 2.1	41.0 ± 1.9	42.7 ± 1.8	44.5 ± 1.7	46.2 ± 1.6	47.9 ± 1.5	51.5 ± 1.3	53.2 ± 1.2	54.9 ± 1.1
1	^{103}Ru	41.1 ± 7.2	46.4 ± 7.5	50.7 ± 8.5	62.0 ± 10.1	62.4 ± 10.3	76.6 ± 12.9	75.8 ± 12.9	63.6 ± 11.7	63.7 ± 10.8
2	^{99}Mo	48.7 ± 7.9	58.2 ± 9.4	73.3 ± 11.8	73.5 ± 11.8	94.0 ± 15.1	86.5 ± 13.9	87.0 ± 14.0	74.6 ± 12.0	70.8 ± 11.5
3	^{141}Ce	32.6 ± 5.9	36.6 ± 6.4	44.8 ± 7.5	44.1 ± 7.4	56.1 ± 9.3	47.9 ± 7.9	48.0 ± 7.9	42.9 ± 7.1	39.6 ± 7.5
4	^{132}Te	17.6 ± 2.9	19.4 ± 3.2	22.8 ± 3.7	21.8 ± 3.5	27.2 ± 4.4	24.4 ± 4.0	22.7 ± 3.7	19.5 ± 3.2	17.6 ± 2.9
5	^{115}Cd	33.7 ± 5.6	44.0 ± 7.2	54.34 ± 8.8	55.3 ± 9.0	73.0 ± 11.8	66.3 ± 10.7	68.4 ± 11.0	62.0 ± 10.0	58.6 ± 9.6
6	^{131}I	38.9 ± 6.3	46.5 ± 7.6	54.9 ± 8.9	54.8 ± 8.9	66.0 ± 10.6	60.6 ± 9.8	58.0 ± 9.3	49.3 ± 7.9	48.2 ± 7.8
7	^{126}Sb	10.8 ± 2.0	14.8 ± 2.5	17.5 ± 2.9	17.6 ± 2.9	25.3 ± 4.2	21.8 ± 3.6	22.1 ± 3.6	19.3 ± 3.2	20.5 ± 3.6
8	^{127}Sb	33.1 ± 5.9	35.1 ± 6.1	41.5 ± 6.9	42.6 ± 7.1	49.5 ± 8.2	44.7 ± 7.4	42.6 ± 7.0	36.2 ± 6.0	34.5 ± 6.2
9	^{140}Ba	27.8 ± 4.8	30.2 ± 5.3	40.8 ± 7.2	39.4 ± 6.9	44.0 ± 7.3	41.8 ± 6.4	37.3 ± 6.5	32.3 ± 5.3	31.5 ± 5.5
10	^{95}Zr	49.8 ± 12.4	68.2 ± 14.2	75.1 ± 13.6	69.5 ± 12.5	87.4 ± 15.6	85.1 ± 15.2	82.4 ± 14.4	80.1 ± 13.9	75.5 ± 23.9
11	^{96}Nb	5.6 ± 1.3	6.1 ± 1.5	8.7 ± 1.9	9.4 ± 1.9	10.0 ± 2.4	15.3 ± 3.5	12.8 ± 3.4	11.0 ± 2.9	9.8 ± 2.0
12	^{105}Rh	47.8 ± 9.0	55.8 ± 10.0	59.8 ± 10.6	74.4 ± 12.5	74.7 ± 12.5	86.4 ± 14.3	81.1 ± 13.5	77.9 ± 12.8	77.7 ± 13.4
13	^{111}Ag	37.3 ± 11.5	37.5 ± 19.7	50.1 ± 15.8	63.6 ± 14.3	61.3 ± 14.7	70.4 ± 15.9	77.2 ± 13.7	67.6 ± 16.2	60.4 ± 13.9
14	^{112}Pd	30.8 ± 11.3	36.9 ± 7.4	40.6 ± 7.8	52.3 ± 9.2	51.7 ± 9.2	67.2 ± 11.5	66.4 ± 11.3	61.0 ± 10.3	64.9 ± 12.2
15	^{122}Sb	4.3 ± 1.1	4.5 ± 0.9	4.9 ± 1.12	5.5 ± 1.1	5.5 ± 1.1	5.8 ± 1.1	6.3 ± 1.2	5.5 ± 1.0	5.6 ± 1.3
16	^{124}Sb	9.8 ± 3.2	12.0 ± 3.5	14.3 ± 4.1	18.3 ± 4.3	20.3 ± 4.4	22.7 ± 4.5	24.9 ± 4.9	28.2 ± 5.2	19.7 ± 6.1
17	^{136}Cs	$9. \pm 2.8$	11.0 ± 2.0	11.9 ± 2.2	14.5 ± 2.5	13.7 ± 2.3	16.7 ± 2.8	15.3 ± 2.6	14.5 ± 2.4	13.8 ± 2.5
18	^{143}Ce	21.8 ± 4.2	23.0 ± 4.1	22.1 ± 4.0	27.4 ± 4.6	28.2 ± 4.8	32.0 ± 5.4	30.4 ± 5.0	26.5 ± 4.4	24.3 ± 5.5

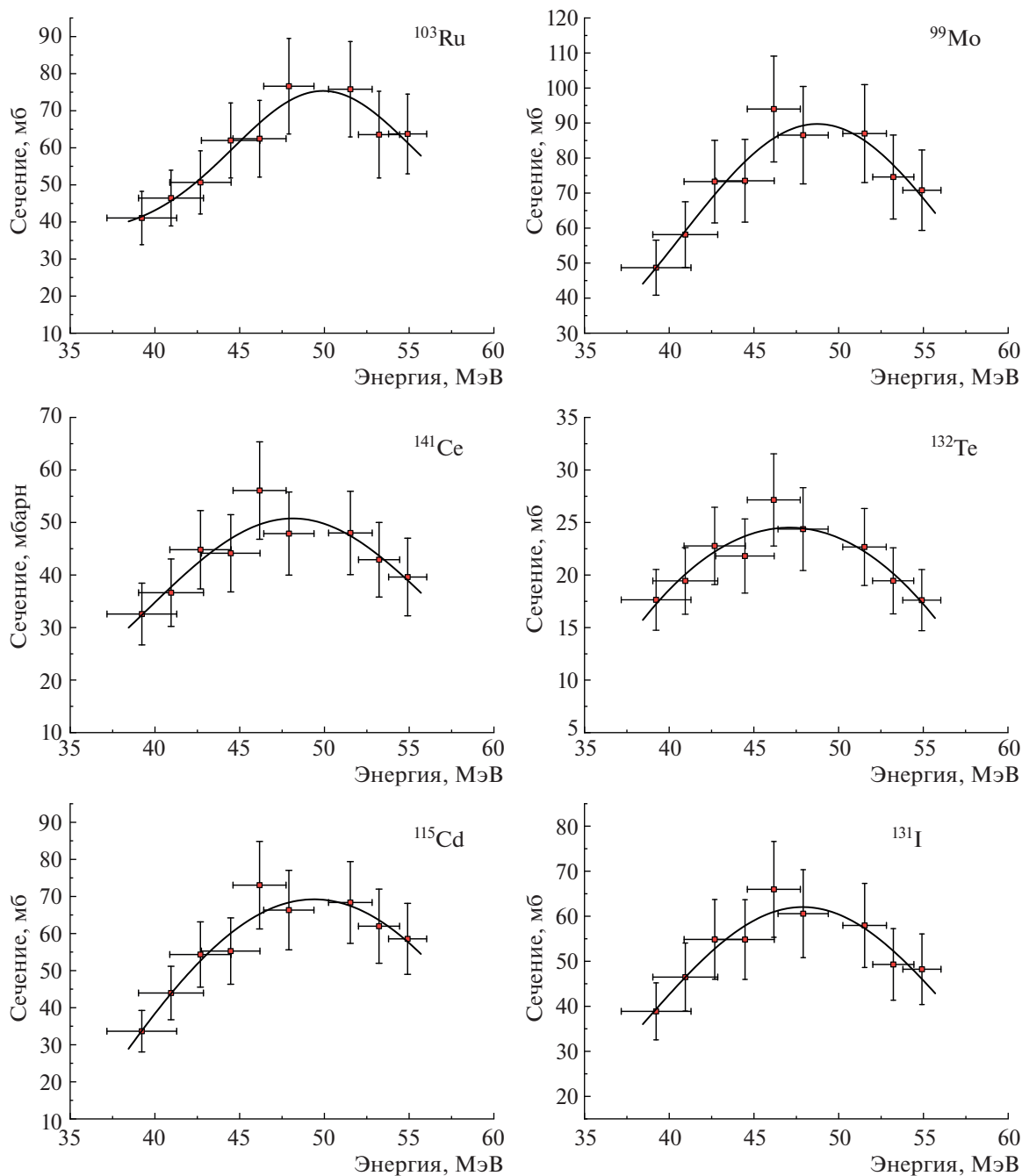


Рис. 1. Зависимость кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th от энергии ядер ^3He (часть 1).

тором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических гамма-источников из комплекта ОСГИ. Максимальное время набора аппаратурных гамма-спектров не превышало 1 ч. Активность осколков деления измеряли в течение ~ 1 месяца после окончания облучения.

При определении активностей вводили расчетные поправки на распад радионуклида за время измерения и самопоглощение γ -квантов в мишенях. В качестве поправки на самопоглощение

γ -квантов принимали относительное ослабление узкого пучка γ -квантов соответствующей энергии в направлении детектора слоем ThO_2 , равным половине толщины мишени. Массовые коэффициенты ослабления – из библиотеки данных [25]. Кумулятивные сечения образования продуктов деления определяли по формуле (1):

$$\sigma = \frac{A}{(1 - \exp^{-\lambda T}) NF}. \quad (1)$$

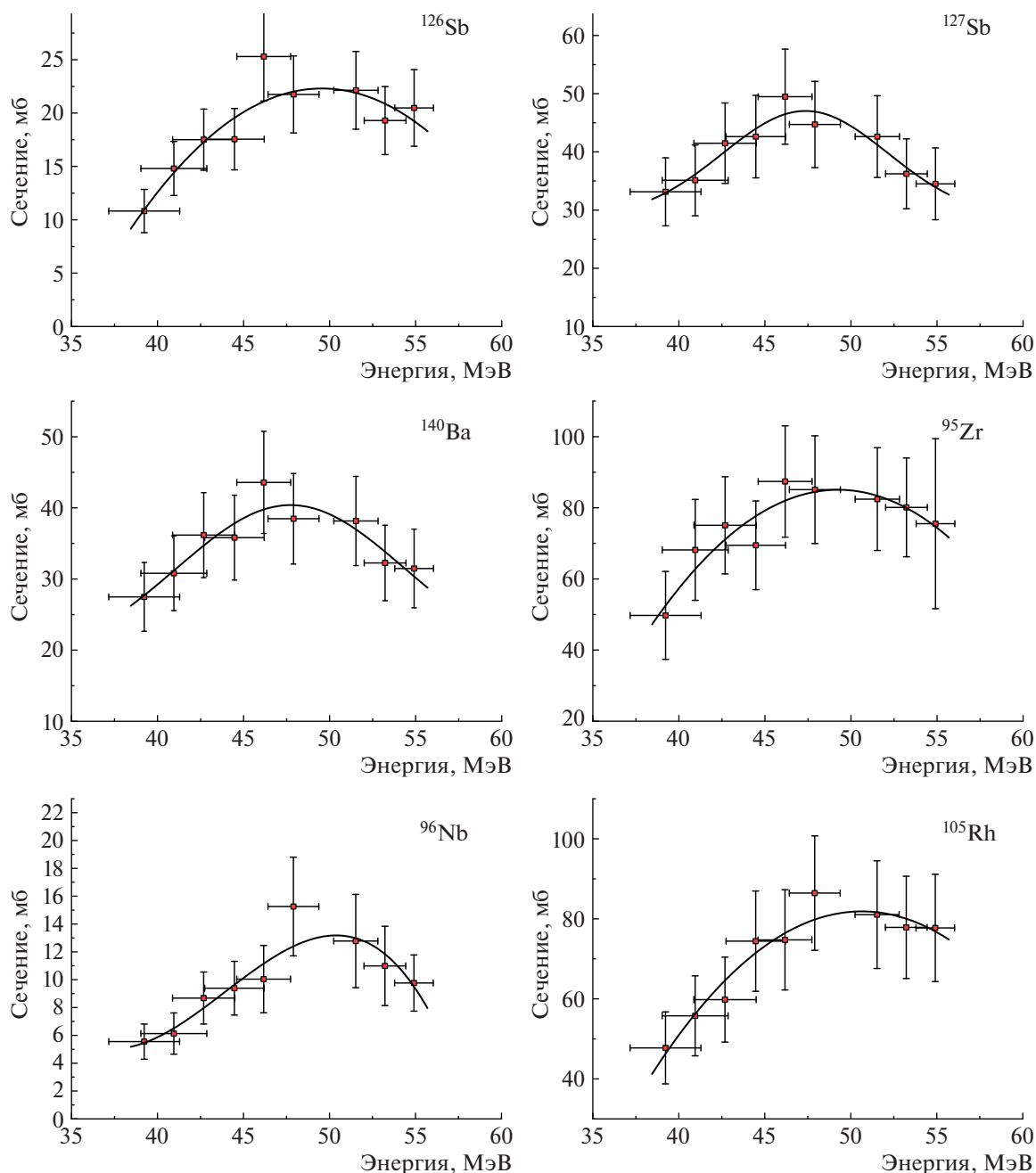


Рис. 2. Зависимость кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th от энергии ядер ^3He (часть 2).

Здесь σ — кумулятивное сечение, см^2 ; A — активность продукта деления в мишени, приведенная к концу облучения, Бк; λ — постоянная распада продукта деления, с^{-1} ; T — время облучения, с; N — количество ядер ^{232}Th ; F — поток ядер ^3He , $\text{с}^{-1}\text{см}^{-2}$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В табл. 2 приведены экспериментальные значения 18 кумулятивных сечений образования

продуктов деления ^{232}Th в области энергий ядер ^3He 39–58 МэВ. Графики соответствующих зависимостей приведены на рис. 1–3. Максимальное значение имеет кумулятивное сечение образования ^{99}Mo (в максимуме 94 мб). Минимальное значение имеет кумулятивное сечение образования ^{122}Sb (в максимуме 6.4 мб). Погрешности экспериментальных кумулятивных сечений находятся в пределах 16–26% при доверительной вероятности 68%. Учтенными составляющими погрешности являлись: погрешность определения эффек-

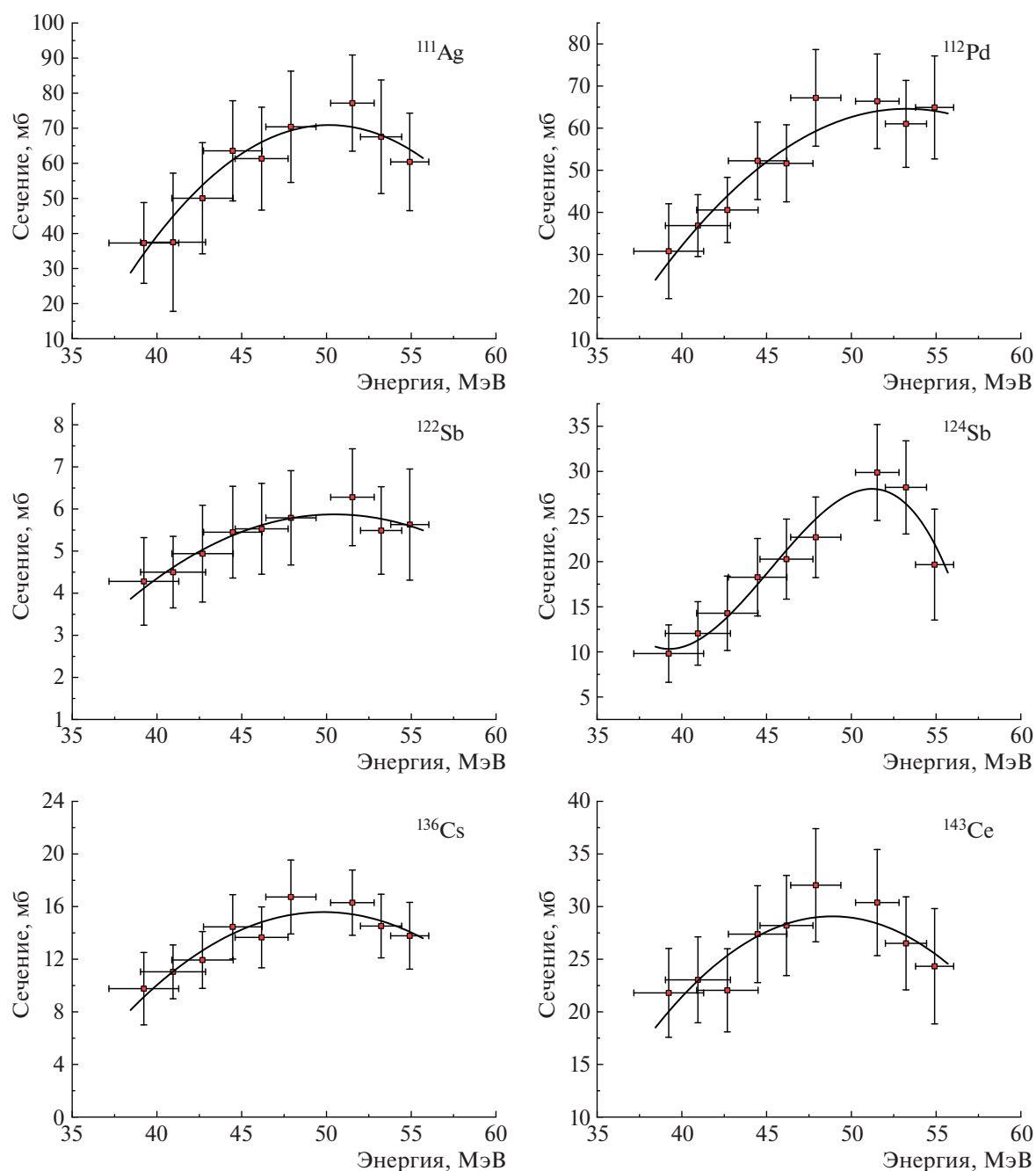


Рис. 3. Зависимость кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th от энергии ядер ^3He (часть 3).

тивности детектора 8–12%; погрешность определения площадей пиков полного поглощения гамма-квантов в аппаратном спектре 10–15%; погрешность использованных для определения активностей квантовых выходов 3–22%. Показанные на графиках погрешности энергии ядер ^3He в точках измерения сечений, определяли по программе SRIM исходя из разброса ± 1 МэВ стартовой энергии ядер ^3He , задаваемой параметрами циклотрона.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе впервые были измерены 18 кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th ядрами ^3He с периодами полураспада от 1 (^{112}Pd , $T_{1/2} = 21$ ч) до 64 (^{95}Zr , $T_{1/2} = 64$ д) дней в области энергий ядер ^3He 39–55 МэВ. Полученные результаты, являясь фундаментальными константами, могут дополнить существующие библиотеки ядерных данных. Кроме того, полученные результаты могут найти практическое применение

при разработке радиохимических методик извлечения и очистки радионуклидов медицинского назначения из облученных ядрами ^3He ториевых мишеней.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 2751 от 28.10.2022.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Abbas K. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2012. V. 278. P. 20.
2. Mastren T., Radchenko V., Hopkins P.D., Engle J.W., Weidner J.W., et al. // PLoS One. 2017. V. 12. P. 12.
3. Libanova O.N. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2020. V. 324 (3). P. 1435.
4. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Радиоактивные цепочки: Справочник (2-е изд., перераб. и доп.). 1988. Москва: Энергоатомиздат.
5. Basu S.K., Mukherjee G., Sonzogni A.A. // Nucl. data Sheets. 2010. V. 111. P. 2555–2737.
6. Abriola D., Sonzogni A.A. // Nucl. Data Sheets. 2008. V. 109 (11). P. 2501–2655.
7. Browne E., Tuli J.K. // Nucl. Data Sheets. 2017. V. 145. P. 25.
8. De Frenne D. // Nucl. Data Sheets. 2009. V. 110 (9). P. 2081–2256.
9. Lalkovski S., Timar J., Elekes Z. // Nucl. Data Sheets. 2009. V. 161. P. 1–353.
10. Blachot J. // Nucl. Data Sheets. 1996. V. 77 (2). P. 299–432.
11. Lalkovski S., Kondev F.G. // Nucl. Data Sheets. 2015. V. 124. P. 157–412.
12. Blachot J. // Nucl. Data Sheets. 2012. V. 113 (10). P. 2391–2535.
13. Tamura T. // Nucl. Data Sheets. 2007. V. 108 (3). P. 455–632.
14. Katakura J., Wu Z.D. // Nucl. Data Sheets. 2008. V. 109 (7). P. 1655–1877.
15. Katakura J., Kitao K. // Nucl. Data Sheets. 2002. V. 97 (3–4). P. 765–926.
16. Hashizume A. // Nucl. Data Sheets. 2011. V. 112 (7). P. 1647–1831.
17. Khazov Y., Mitropolsky I., Rodionov A. // Nucl. Data Sheets. 2006. V. 107 (11). P. 2715–2930.
18. Khazov Y., Rodionov A.A., Sakharov S., Singh B. // Nucl. Data Sheets. 2005. V. 104 (3). P. 497–790.
19. McCutchan E.A. // Nucl. Data Sheets. 2018. V. 152. P. 331–667.
20. Nica N. // Nucl. Data Sheets. 2018. V. 154. P. 1–403.
21. Nica N. // Nucl. Data Sheets. 2014. V. 117. P. 1–229.
22. Browne E., Tuli J.K. // Nucl. Data Sheets. 2012. V. 113 (3). P. 715–908.
23. Герман М.Н., Загрядский В.А., Курочкин А.В., Макоева К.А., Маламут Т.Ю., Новиков В.И., Скобелин И.И., Унежев В.Н. // Ядерная физика. 2022. Т. 85 (1). С. 14–18.
24. Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2010. V. 268. P. 1818.
25. Hubbell J.H., Seltzer S.M. NIST Standard Reference Database No. 126. 1996. Gaithersburg, MD: Natl. Inst. Stand. Technol.

Measurement of Cumulative Cross Sections for ^{232}Th Fission Products upon Irradiation with Medium-Energy ^3He Nuclei

A. A. Smirnov^{1,*}, M. N. German¹, V. A. Zagryadskii¹, K. A. Makoveeva¹,
T. Yu. Malamut¹, V. I. Novikov¹, V. N. Unezhev¹

¹National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

*e-mail: alexandersmirnov601@gmail.com

Received April 20, 2022; revised May 17, 2022; accepted May 23, 2022

Abstract—The cumulative cross sections for ^{232}Th fission products in the energy range of ^3He nuclei of 39–58 MeV are measured. The measurements are made using the activation technique and the foil stack technique. Eighteen cumulative cross sections for the ^{232}Th fission products by ^3He nuclei with half-lives from one (^{112}Pd , $T_{1/2} = 21$ h) to 64 (^{95}Zr , $T_{1/2} = 64$ d) days are measured for the first time. Being fundamental constants, the results can supplement the existing libraries of nuclear data.

Keywords: ^{232}Th nuclei, cyclotron, cumulative cross sections, irradiation with ^3He nuclei, ^{232}Th fission products

УДК 621.039.63

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА РАДИОЛЮМИНОГРАФИИ ДЛЯ АНАЛИЗА РАСПРЕДЕЛЕНИЯ МАЛЫХ КОЛИЧЕСТВ ТРИТИЯ В ЭЛЕКТРОННО-ИНДУЦИРОВАННЫХ ДЕФЕКТАХ ПЕРСПЕКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ ТЕРМОЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

© 2022 г. Н. П. Бобырь^{a, b}, Т. А. Анфимова^{a, c, *}, Б. В. Иванов^a, А. С. Аникин^b, И. Г. Лесина^b, А. А. Семенов^b, Н. Е. Забирова^b, А. С. Крюкова^b, А. Н. Букин^{b, c}, А. В. Лизунов^b

^aНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, 123182 Россия

^bАО “Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара”, Москва, 123098 Россия

^cРоссийский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева, Москва, 125047 Россия

*E-mail: Anfimova_TA@nrcki.ru

Поступила в редакцию 30.05.2022 г.

После доработки 03.06.2022 г.

Принята к публикации 21.06.2022 г.

Актуальность исследований взаимодействия изотопов водорода с материалами термоядерного реактора обусловлена в первую очередь вопросами экономики и безопасности. Особенно важным является изучение влияния дефектов в материалах на накопление водорода. В данной работе продемонстрирована возможность применения метода радиолюминографии для анализа распределения малых количеств трития в электронно-индуцированных дефектах вольфрама. Установлена чувствительность данного метода к величине электронно-индуцированных дефектов с точки зрения обнаружения накопленного в них трития. Поскольку особенности метода позволяют проводить анализ исследуемых материалов многократно, был выполнен повторный анализ образцов вольфрама для оценки изменения распределения трития после длительного хранения на атмосфере.

Ключевые слова: тритий, радиолюминография, фотостимулированная люминесценция, распределение трития, вольфрам, электронно-индуцированные дефекты

DOI: 10.56304/S2079562922030071

Развитие термоядерной энергетики приводит к необходимости поиска материалов для термоядерного реактора, отвечающих жестким требованиям в соответствии с условиями их эксплуатации и нормами безопасности. Среди критериев выбора конструкционных материалов и материалов, обращенных к плазме, важное место занимают характеристики взаимодействия с изотопами водорода, поскольку воздействие интенсивных потоков дейтерия и трития на стенки вакуумной камеры будет сопровождаться захватом изотопов водорода в металлах и сплавах, а так же диффузией сквозь стенку. Такие процессы могут приводить к выходу радиоактивного трития в теплоноситель, а также нарушению баланса топлива в реакторе. Важность изучения удержания водорода материалами обусловлена, прежде всего, экономическими соображениями и безопасностью, так как в случае возникновения аварийной ситуации высок риск выделения трития из материалов.

К числу кандидатных материалов, используемых в настоящих и будущих реакторах (ИТЕР [1], ДЕМО [2]), относится вольфрам, поскольку он обладает наиболее высокой температурой плавления среди металлов, высокой теплопроводностью, хорошей стойкостью к распылению, низким радиационным распуханием, механической прочностью [3]. При горении плазмы в термоядерном реакторе, помимо воздействия высоких тепловых нагрузок и интенсивных потоков изотопов водорода, вольфрам будет подвержен облучению образующимися продуктами D–T реакции — ионами гелия с энергией 3.5 МэВ и нейтронами с энергией 14.1 МэВ [4, 5]. Воздействие ионов и нейтронов будет приводить к созданию в материалах дефектов, являющихся дополнительными ловушками для захвата водорода. В связи с этим приобретает актуальность исследования влияния нейтронно-индуцированных повреждений на накопление изотопов водорода в материалах термоядерного реактора. В связи со сложностью экспериментальных исследований нейтронно-

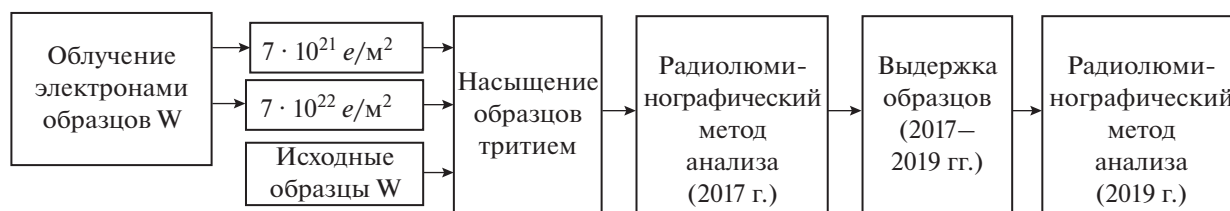


Рис. 1. Блок — схема эксперимента.

облученных образцов наработка дефектов в структуре материалов осуществляется путем облучения тяжелыми ионами, легкими ионами (протонами, углеродом) и электронами [6–9].

В рамках данной работы было проведено исследование удержания трития в вольфраме, облученном электронами. Данный метод позволяет обеспечить равномерное распределение дефектов по глубине материала (~1 мм). Стоит отметить, что скорость наработки дефектов при таком методе очень невысока и составляет 10^{-8} – 10^{-7} смещений на атом в секунду (сна/с), и ограничивается нагревом облучаемого образца. Для оценки распределения трития в вольфраме использовались методы радиолуминографии и регистрации тормозного излучения. Указанные методы применялись в работах по изучению влияния облучения ионами гелия [10], плазмой (TEXTOR) [11] на удержание трития в вольфраме. Целью данной работы является демонстрация принципиальной возможности применения данных методов для изучения влияния дефектов материала, созданных облучением малым потоком электронов, на удержание трития. Важной задачей данного ис-

следования является определение чувствительности указанных методов к небольшим количествам трития, накапливаемым в таких дефектах.

В работе приведены результаты исследования распределения трития в вольфраме непосредственно после насыщения из газовой фазы, а также после длительного (~2 г) хранения. Возможность повторного анализа образцов обеспечивается тем, что используемые методы радиолуминографии и регистрации тормозного излучения являются неразрушающими и не оказывающими влияния на тритий, удерживаемый в материале.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Данная работа состояла из нескольких последовательных этапов. Блок-схема эксперимента представлена на рис. 1.

Для исследования в данной работе использовались три образца вольфрама ($10 \times 10 \times 1$ мм³), изначально рекристаллизованные при температуре 1673 К в течение 1 ч с целью уменьшения содержания естественных дефектов. Два образца были подвергнуты облучению электронами до интегральных доз $7 \cdot 10^{21}$ и $7 \cdot 10^{22}$ е/м², что в пересчете на повреждающую дозу составляет $4 \cdot 10^{-5}$ и $4 \cdot 10^{-4}$ сна соответственно. На рис. 2 представлен расчетный профиль распределения дефектов по толщине образца. В ходе облучения температура образцов не превышала 150°C. На рис. 2 более высокий уровень повреждений в начале профиля соответствует лицевой стороне образца, обращенной к облучающему потоку. Подробная методика электронного облучения представлена в работе [12].

После облучения образцы вольфрама насыщались тритием в вакуумной установке путем выдержки в газе при температуре 523 К и давлении $8 \cdot 10^5$ Па в течение 48 ч. Образец устанавливался в камеру насыщения таким образом, чтобы насыщение тритием происходило со всех его сторон. Газовые магистрали установки предварительно прогревались и откачивались с помощью высоковакуумного турбомолекулярного поста. Подача трития в установку осуществлялась из хранилища с

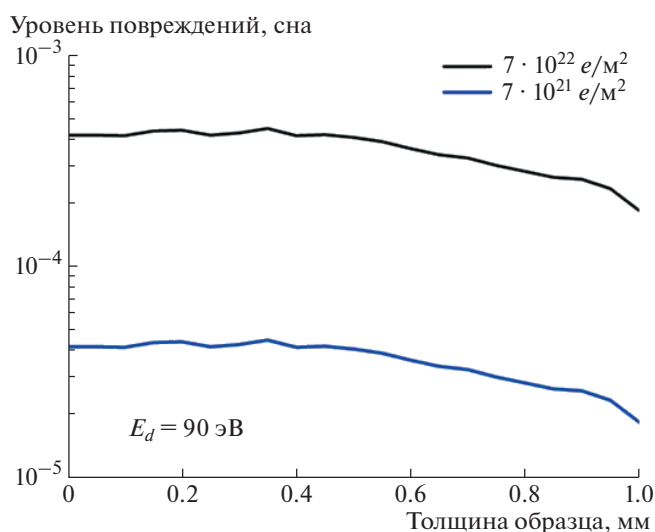


Рис. 2. Расчетный профиль распределения дефектов по толщине образца.

гидридообразующим материалом ZrCo. Давление водорода в камере насыщения измеряется с помощью датчиков избыточного давления “ОВЕН”. Режим нагрева установки программируется контроллером температуры “Термолюкс”. Концентрация трития может быть определена с помощью ионизационной камеры и по показаниям квадрупольного масс-спектрометра OMNISTar. Во избежание утечки трития в рабочее помещение камера насыщения заключена во внешний герметичный корпус, оснащенный датчиками давления и температуры [13]. Герметичный корпус имеет выход на проточную ионизационную камеру для контроля содержания трития, в качестве газа-заполнителя герметичного корпуса использовался аргон.

После насыщения тритием образцы были извлечены из установки и исследованы методом радиолюминографии [14]. Данный метод основан на применении специальных фотопластин, выступающих в качестве двумерных датчиков тритиевого излучения. Далее в статье для обозначения данных пластин будет использоваться традиционное для англоязычной литературы сокращение “IP” (Imaging Plate) [15].

Получение изображения на фотостимулированных материалах по аналогии с обычными фотопленками представляет собой двухступенчатый процесс [16]. Первый этап — получение скрытого изображения — представляет собой образование дырочных и электронных F-центров в кристаллах фотостимулированного материала IP-пластины при воздействии электронов, образующихся при β -распаде трития. Чтобы достигнуть поверхности пластины, глубина образца, с которой испускаются электроны, должна быть меньше или равна длине свободного пробега электрона с максимальной энергией излучения (18.6 кэВ). Поэтому для получения картины распределения трития по толщине образцов вольфрама были сделаны поперечные срезы образцов толщиной 1 мм. Срезы насыщенных тритием образцов выдерживались на IP — пластине в течение 1 мин, чтобы получить скрытое изображение распределения трития. Второй этап — проявление скрытого изображения — основан на испускании квантов света определенной длины волны при воздействии света постоянной интенсивности на поверхность IP — пластины, т.е., фотостимулированной люминесценции (ФСЛ). Испускаемые кванты света могут быть зарегистрированы различными методами, при этом интенсивность фотостимулированной люминесценции пропорциональна дозе электронного облучения пластины. Полученные профили распределения трития по образцу могут быть использованы для расчета коэффициента диффузии водорода в исследуемом материале. Полученные в работах [17, 18] радио-

люминографическим методом коэффициенты диффузии водорода в сплаве циркония и стали 316L хорошо согласуются с представленными в литературе данными, что свидетельствует о применимости метода радиолюминографии для определения закономерностей взаимодействия трития с материалами. Необходимо отметить, что для определения данных закономерностей использовались образцы, насыщенные тритием до высокой концентрации, поскольку цирконий и сталь 316L характеризуются высокой растворимостью водорода. В данной работе на примере вольфрама оценивается применимость радиолюминографического метода для исследования материалов с низкой растворимостью изотопов водорода и низким коэффициентом диффузии.

В данной работе в качестве чувствительного элемента для получения скрытого изображения распределения трития на поверхности образцов использовалась IP-пластина Fuji BAS-TR2025 (Fujifilm, Япония). На рис. 3 представлены радиолюминограммы лицевых поверхностей исследуемых образцов вольфрама. Области с более интенсивным свечением соответствуют участкам с более высокой концентрацией трития, поскольку именно эти области были подвержены облучению электронами, в то время как остальная поверхность образцов во время облучения электронами была закрыта специальной защитной маской. Для количественной оценки трития в вольфраме использовались стандартные образцы, содержащие известное количество трития. Сравнение со стандартными образцами позволяет определить относительные концентрации трития в исследуемом вольфраме. Полученные радиолюминограммы демонстрируют сравнительно высокие уровни трития на поверхности облученного вольфрама. Это может объясняться тем, что тритий, скорее всего, захвачен в углеродной пленке, осажденной в ходе облучения электронами. Углерод характеризуется значительным удержанием трития, в связи с этим поверхность образцов перед выдержкой на IP-пластине обрабатывается спиртом для удаления углеродной пленки. Повышенная концентрация трития на лицевой и обратной поверхностях образца приводит к засветке фотопластины при получении изображения среза образца. При анализе профилей из рассмотрения были исключены участки толщиной 0.05–0.1 мм с каждого края образца, так как в этой области существенное влияние оказывает излучение трития с боковых поверхностей образца.

На рис. 4 представлена схема получения профиля распределения трития в продольных и поперечных срезах на примере образца, облученного наибольшим потоком электронов. В связи с

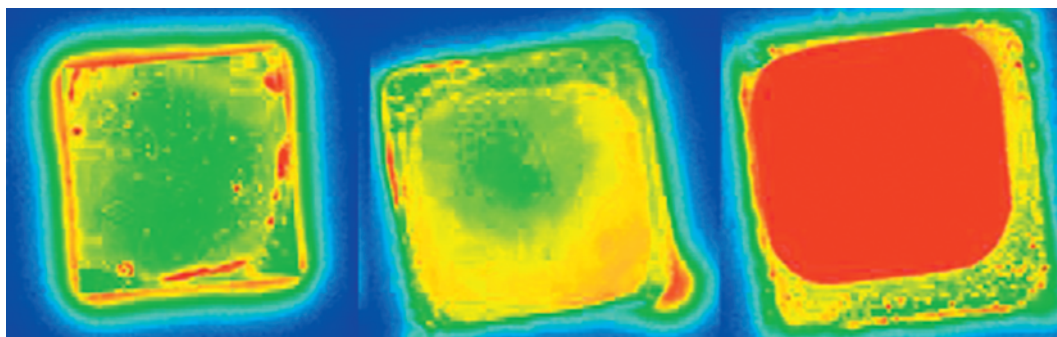


Рис. 3. Радиолюминограммы образцов вольфрама. Слева направо: необлученный (W1), облученный $7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$ (W4) и облученный $7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$ (W7).

тем, что значения интенсивности получаются в относительных единицах, то корректно сравнивать только изображения, полученные на одной пластине после одновременной выдержки нескольких образцов одинаковое время. Для получения продольного профиля делался срез образца вдоль его длины (срез А–А на рис. 4). Толщина среза составляла 1 мм, длина 10 мм. Распределение концентрации трития в продольном срезе вдоль длины образца (10 мм) представлено на рис. 4б. Низкая концентрация трития в начале профиля соответствует области образца, закрытой от облучения защитной маской. Плато на профиле концентрации указывает на равномерное распределение трития по длине зоны облучения. Далее из верхней, центральной и нижней областей продольного среза отсекались три участка (рис. 4в). Полученные профили концентрации в указанных трех поперечных срезах (рис. 4г) представляют наибольший интерес, поскольку отражают распределение трития по толщине образца (1 мм). Профиль № 1 соответствует распределению в зоне, не содержащей индуцированные дефекты. Из рисунка 4 видно, что содержание трития в области, содержащей дефекты структуры (профили №№ 2 и 3), выше, чем в неповрежденной области (профиль № 1). Кроме этого следует отметить, что профиль распределения трития в области с дефектами характеризуется наклоном, убывающим от поверхности, обращенной к облучающему потоку, к обратной поверхности, что соответствует профилю распределения дефектов (рис. 2).

Чтобы оценить динамику изменения распределения трития во времени, насыщенные тритием срезы образцов хранились в течение двух лет при температуре жидкого азота для снижения скорости диффузии трития в образцах. Далее был проведен повторный анализ трития в поперечных и продольных срезах образцов радиолюминографическим методом, а также путем регистрации тормозного рентгеновского излучения. Второй метод основан на том, что потери энергии электрона, вызванные его торможением в кулоновском поле атома, преобразуются в кванты рентгеновского излучения. Глубина выхода тормозного рентгеновского излучения из металлов и сплавов значительно превышает глубину выхода бета-излучения (около 1 мкм) и составляет около 10–30 мкм, что позволяет оценить содержание и распределение трития не только на поверхности, но и в объеме материалов [19]. В данной работе для регистрации тормозного излучения образцы выдерживались в течение 17 ч на IP – пластине, покрытой защитным слоем полиэтиленовой пленки, выполняющим функцию барьера для бета-излучения (электронов, образующихся при распаде трития). Обработка скрытого изображения, полученного на IP-пластине, проводилась на приборах BAS-1800II (Fujifilm) с разрешением 50 мкм и Amersham Typhoon (GE Healthcare) с разрешением 10 мкм.

РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 5 представлена зависимость средней удельной интенсивности фотостимулированной люминесценции (ФСЛ) для всего образца и средней удельной интенсивности в зоне, обращенной к облучающему потоку, от величины облучающей дозы электронов. Удельная интенсивность по всему образцу (на рис. 5 показана квадратными маркерами) рассчитывалась как отношение общей интенсивности ФСЛ, измеренной по всему образцу, к площади всего образца. Удельная интенсивность в зоне облучения (на рис. 5 показана круглыми маркерами) рассчитывалась как отношение интенсивности ФСЛ, измеренной в области облучения, к площади облученного участка. Из полученной зависимости следует, что с увеличением облучающей дозы электронов возрастает измеряемая интенсивность люминесценции (ФСЛ) и, соответственно, концентрация трития в вольфраме. Интенсивность люминесценции в зоне облучения для образца, облученного до дозы $7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$,

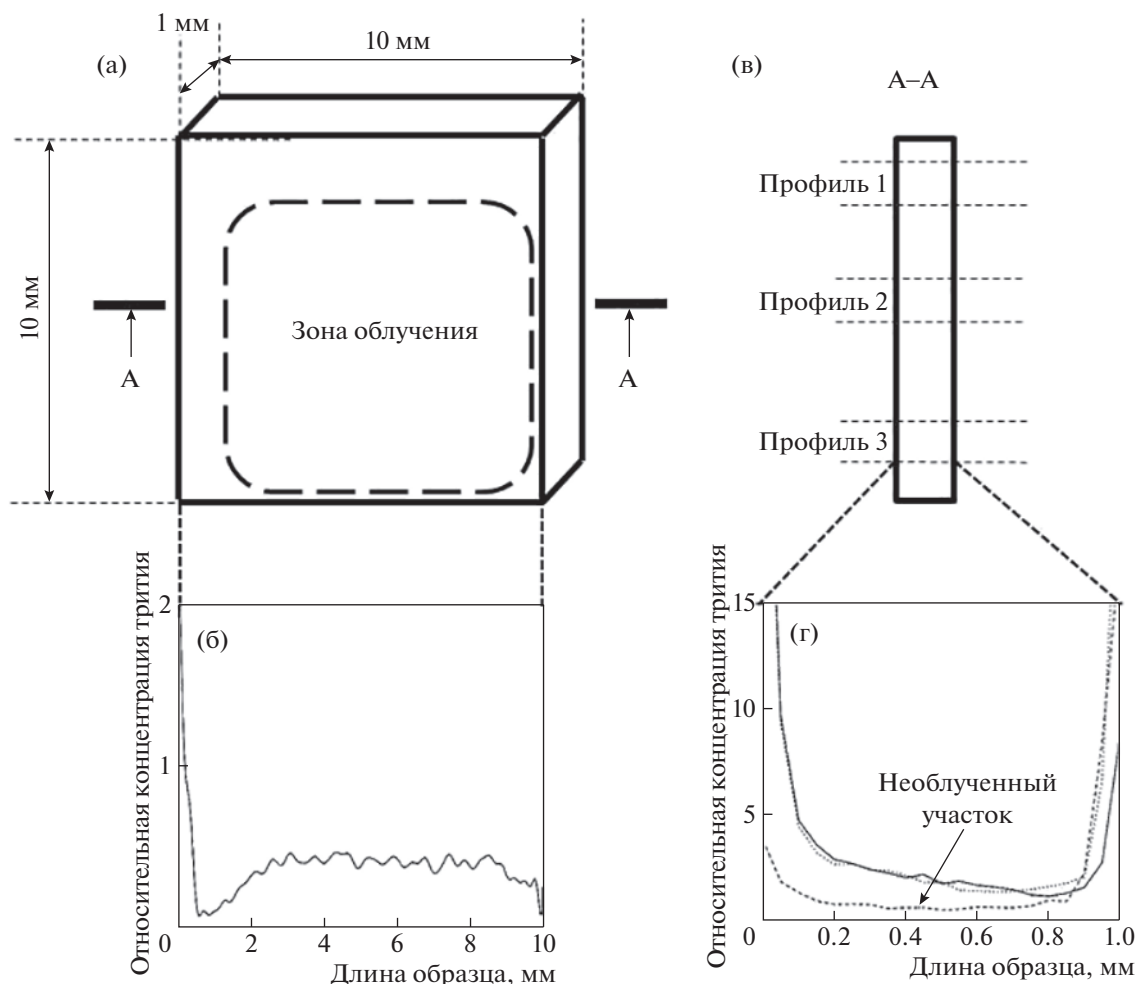


Рис. 4. Схемы получения продольных (а), (б) и поперечных (в), (г) профилей распределения трития в образце вольфрама, облученном до дозы $7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$.

отличается от интенсивности в необлученном образце вольфрама в ~ 2 раза. Отношение интенсивности ФСЛ в зоне облучения для образца, облученного до дозы $7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$, к интенсивности люминесценции для необлученного образца равно ~ 7 . Полученные результаты свидетельствуют о влиянии величины облучающей дозы электронов на удержание трития в образцах.

На рис. 6 представлены профили концентраций трития на поверхности продольных срезов образцов вольфрама, полученные радиolumинографическим методом. Анализ полученных профилей подтверждает вышеуказанные выводы: для облученного до наибольшей дозы ($7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$) образца характерна наибольшая концентрация трития. При этом низкая концентрация трития в начале профиля, как было отмечено выше, обусловлена отсутствием электронно-индуцированных дефектов в этой области. В зоне электронного облучения тритий распределен равномерно. Концентрация трития в образце, облученном

электронами до меньшей дозы, сопоставима с концентрацией трития в необлученном образце. Одинаково низкая концентрация трития в профилях распределения для облученного до наименьшей дозы ($7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$) образца и необлученного образца указывает на нижний предел обнаружения трития в условиях данного эксперимента.

На рис. 7 представлены профили распределения трития в поперечных срезах образцов вольфрама. Разные типы линий соответствуют разным поперечным срезам одного образца (пример получения поперечных срезов представлен на рис. 4). При этом для образца, облученного до наибольшей дозы, был также получен профиль распределения трития в необлученной области, то есть не содержащей электронно-индуцированных дефектов структуры (рис. 7в). Поперечные профили, полученные для каждого образца, практически совпадают, что свидетельствует об одинаковом распределении трития по толщине

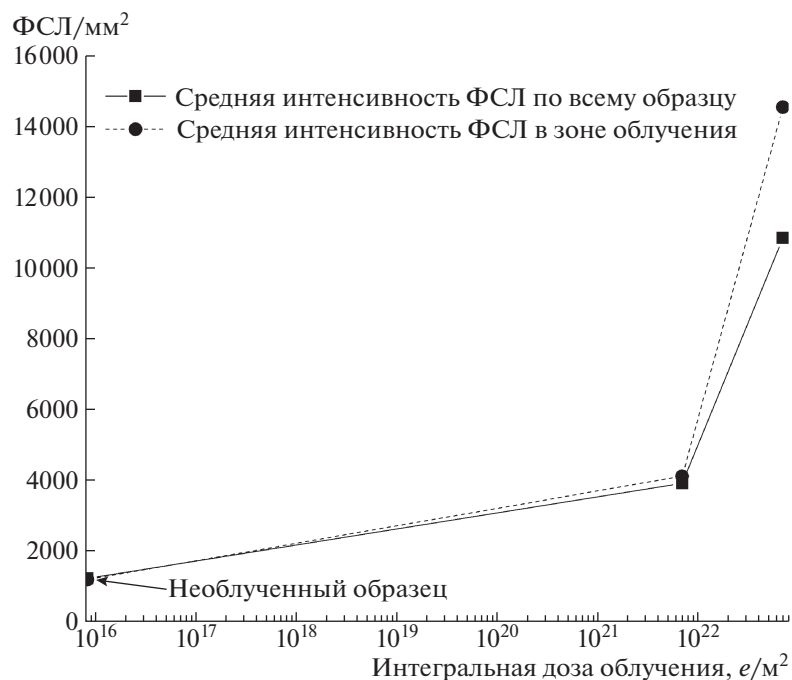


Рис. 5. Зависимость интенсивности фотостимулированной люминесценции от дозы облучения (2017 г.).

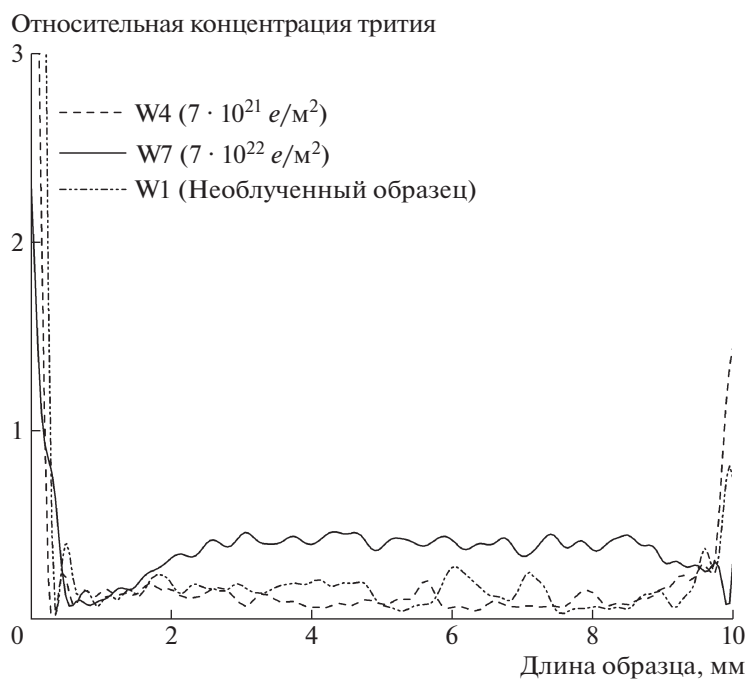


Рис. 6. Профили концентрации трития в продольных срезах образцов вольфрама (2017 г.).

образца независимо от координаты длины зоны облучения.

На рис. 8, объединяющем профили с рис. 7, представлено сравнение профилей распределе-

ния трития в центральной области образцов вольфрама (профиль № 2 на рис. 4в). Экспериментально полученные профили распределения трития аппроксимированы линейными зависимостями, которые представлены на рис. 8 сплошными ли-

ниями, позволяющими оценить распределение трития по толщине образца.

Для слабооблученного образца невозможно установить влияние дефектов на захват трития. Профиль образца, облученного до меньшей интегральной дозы (W4), совпадает с профилем распределения трития в необлученном образце. При этом распределение трития по всей толщине этих образцов является равномерным, то есть характеризуется постоянной концентрацией в пределах погрешности, поскольку разница между концентрациями в начале и конце профиля является незначительной относительно этой же разницы для профиля, облученного до наибольшей дозы. Профиль распределения трития в образце, облученном до наибольшей интегральной дозы, характеризуется снижением концентрации трития по толщине образца, что отражается в наибольшей величине наклона данного профиля (рис. 8).

Сравнение представленных на рис. 6, 7 и 8 профилей распределения трития для трех образцов показывает, что образец облученный до интегральной дозы $7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$, и необлученный образец характеризуются равным и относительно равномерным распределением концентраций по длине и толщине образца. При этом для указанных образцов уровень концентрации трития в продольном и поперечном срезях значительно ниже, чем для образца, облученного до интегральной дозы $7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$. На основании вышеизложенного можно сделать вывод о том, что при повреждающей дозе меньше $4 \cdot 10^{-4}$ сна метод радиолюминесценции не позволяет оценить распределение трития в дефектах в условиях данного эксперимента. Данный предел чувствительности обусловлен характеристиками сканера, используемого в данной работе для проявления изображения с IP-пластин, а также свойствами самой IP-пластины. Стоит отметить, что используемые в экспериментальной работе сканер и IP-пластины на сегодняшний день обладают максимальным разрешением. В связи с этим, можно утверждать, что значение $1 \cdot 10^{-4}$ сна является нижним пределом чувствительности метода радиолюминесценции ввиду отсутствия более широких технических возможностей проведения радиолюминесцентного анализа.

Как было отмечено в описании экспериментальной методики, образцы вольфрама после длительного хранения (2017–2019 гг.) были повторно исследованы с применением метода радиолюминесценции и регистрации тормозного рентгеновского излучения. На рис. 9 представлены профили концентрации трития в поперечных срезях образцов вольфрама, полученные радиолюминесцентным методом. В необлученном образце и образце, облученном меньшим потоком электронов, тритий распределен сравнительно

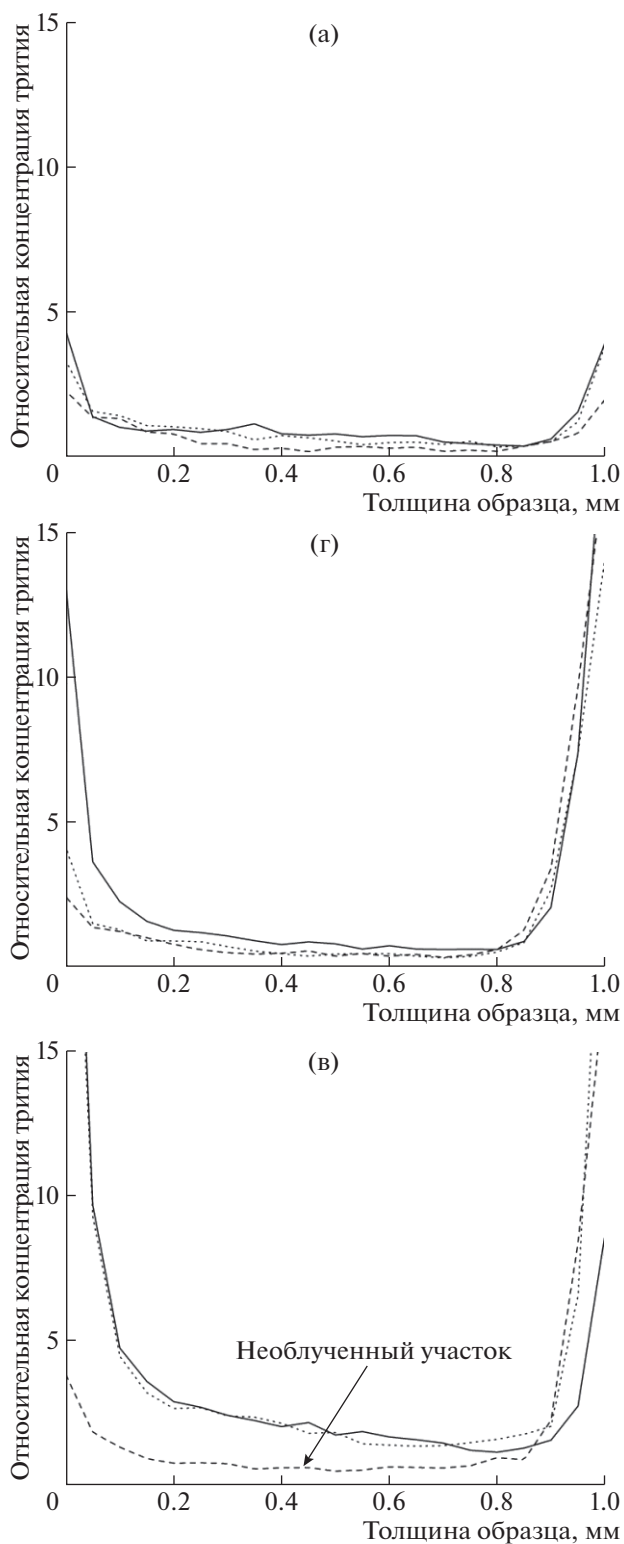


Рис. 7. Профили концентрации трития в поперечных срезях образцов вольфрама (2017 г.): (а) необлученный образец вольфрама (W1); (б) образец, облученный до интегральной дозы $7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$ (W4); (в) образец, облученный до интегральной дозы $7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$ (W7).

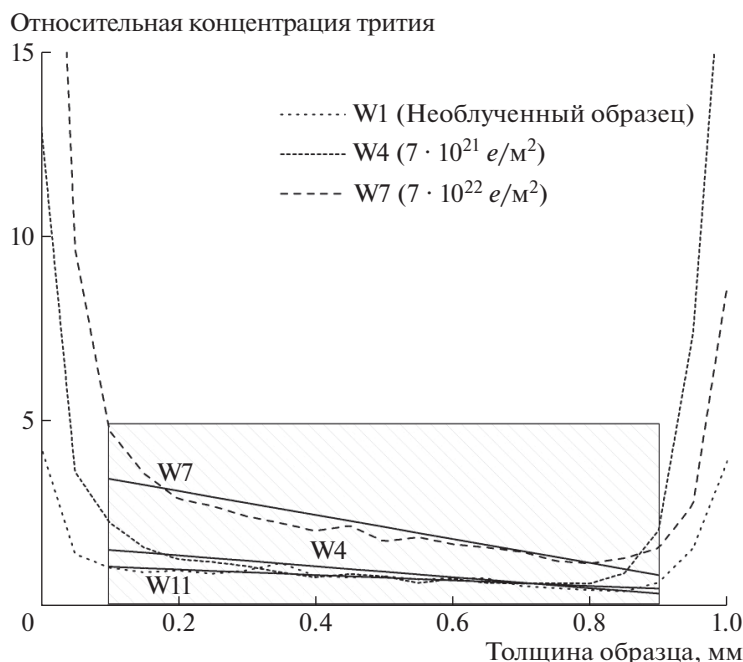


Рис. 8. Сравнение профилей концентрации для образцов вольфрама сразу после насыщения (2017 г.).

но равномерно, средняя концентрация по толщине не превышает 0.005 относительных единиц. На профилях для облученной части образца, облученного до интегральной дозы $7 \cdot 10^{22} \text{ е/м}^2$, наблюдается наличие пика (экстремума). Сравнение концентраций трития в облученном и необлученных образцах после насыщения и после длительного хранения представлено в табл. 1.

Уменьшение концентрации трития в приповерхностных областях облученного образца может быть связано с изотопным обменом между содержащимся в образце тритием и водородом, присутствующим в атмосфере, в ходе длительного хранения.

Анализ распределения трития в образцах вольфрама проводился также с применением метода регистрации тормозного рентгеновского излучения. На рис. 10 представлены профили распределения трития в поперечных срезах образцов, по-

лученные после длительного хранения. Также как и при анализе 2017 г. для каждого образца профиль распределения трития по сечению был снят в трех–четыре места для набора статистики, что отражено на рис. 10 линиями разного типа. Относительные концентрации трития в облученных и необлученных образцах практически равны. В целом, картина распределения трития в образцах не соответствует результатам, которые были получены радиолюминографическим методом. Это может быть связано с особенностями используемых методик исследования. Регистрация тормозного излучения позволяет оценить количество трития в большей толщине материала, чем метод радиолюминографии и нивелировать влияние пленок, образующихся на поверхности материала. Тот факт, что IP-пластина детектирует рентгеновское излучение, проникающее с большей глубины, чем бета-излучение, приводит к тому, что полученное изображение распределения трития является несколько геометрически искаженным и более сглаженным.

ВЫВОДЫ

Исследование распределения трития в необлученных и облученных электронами образцах вольфрама проводилось методом радиолюминографии непосредственно после насыщения образцов тритием, а также после длительной выдержки на атмосфере. Анализ полученных результатов позволяет сделать следующие выводы:

Таблица 1. Сравнение отношений концентрации трития в необлученном и облученных образцах после насыщения и после длительного хранения

Отношение концентраций трития в центральной области профиля	2017 год (после насыщения)	2019 год
W7/W1	3.3	2.5
W4/W1	1.0	0.5
W7/W4	3.3	5.6

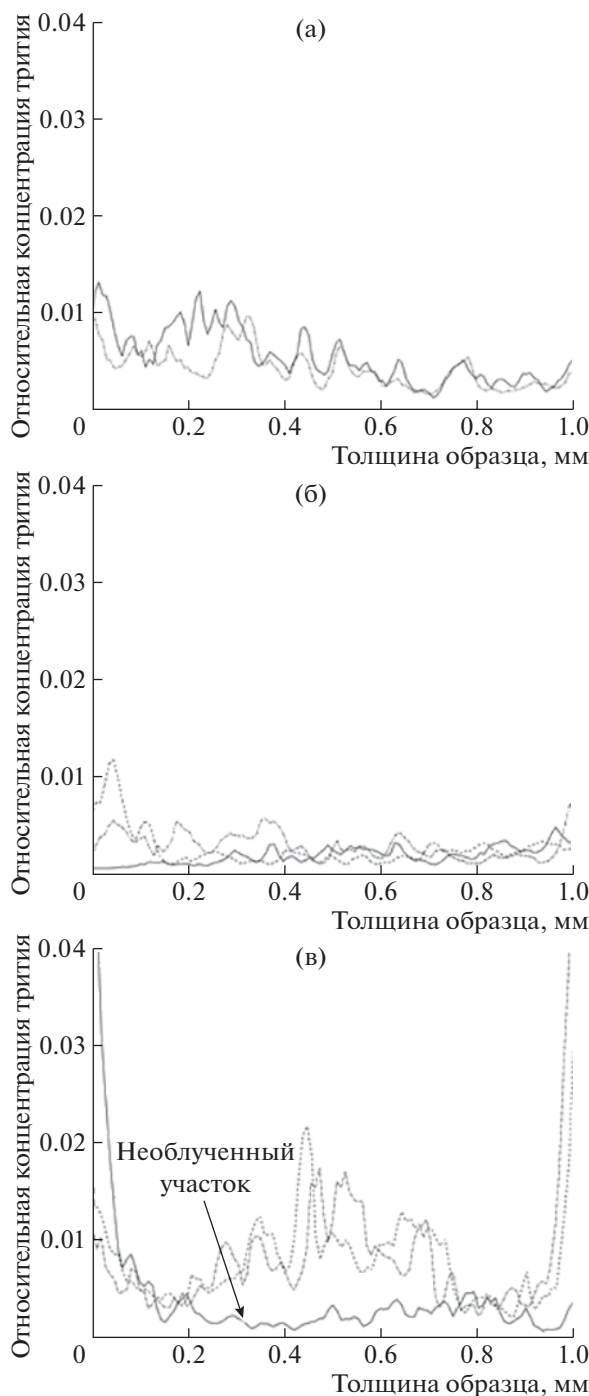


Рис. 9. Профили концентрации трития в поперечных срезах образцов вольфрама (2019 г.): (а) необлученный образец вольфрама (W1); (б) образец, облученный до интегральной дозы $7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$ (W4); (в) образец, облученный до интегральной дозы $7 \cdot 10^{22} \text{ e/m}^2$ (W7).

- Продemonстрирована принципиальная возможность применения метода радиолуминографии для анализа распределения малых количеств трития в электронно-индуцированных дефектах вольфрама. Интенсивность люминесценции в зоне облучения для образца, облученного до дозы

$7 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^2$, отличается от интенсивности в необлученном образце вольфрама в ~ 2 раза.

- В соответствии с актуальными на сегодняшний день техническими возможностями радиолуминографического анализа установлена чувствительность данного метода к величине элек-

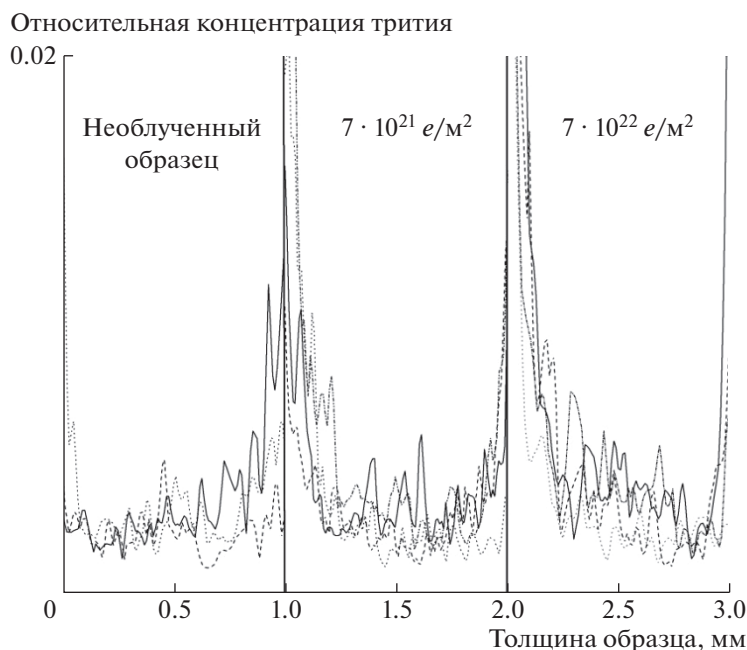


Рис. 10. Профили концентраций трития в поперечных срезах образцов вольфрама, полученные путем регистрации тормозного излучения (2019 г.).

тронно-индуцированных дефектов с точки зрения обнаружения накопленного в них трития. В условиях данной экспериментальной работы значение $1 \cdot 10^{-4}$ сна может быть установлено в качестве предела чувствительности метода радиолюминографии для обнаружения трития в дефектах.

- На основании снижения концентрации трития в приповерхностных областях после длительного хранения образцов, было сделано предположение о возможном влиянии изотопного обмена с водородом, присутствующим в атмосфере, на изменение распределения трития в вольфраме.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт” (Приказ №2948 от 18.11.2021).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Shimada M. et al. // J. Nucl. Mater. 2015. V. 337–339. P. 808–815.
2. You J.H. et al. // Fusion Eng. Des. B. 2016. V. 109–111. Part B. P. 1598–1603.
3. Papadakis D., Dellis S., Mergia K., Chatzikos V., Terentyev D., et al. The // Fusion Eng. Des. 2021. V. 168. P.112608.
4. Bobyr N.P. et al. // J. Nucl. Mater. 2015. V. 463. P. 1122–1124.
5. Hirai T. et al. // Nucl. Mater. Energy. 2016. V. 9. P. 616–622.
6. Alimov V.Kh., Torikai Y., et al. // Fusion Eng. Des. 2021. V. 162. P. 112100.
7. Hatano Y. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 438. P. S114–S119.
8. Rogozhkin S.V. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2021. V. 486. P. 1–10.
9. Khripunov B.I. et al. // Phys. Proc. 2015. V. 71. P. 63–67.
10. Nobuta Y. et al. // J. Nucl. Mater. 2015. V. 463. P. 993–996.
11. Torikai Y. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 438. P. S1121–S1124.
12. Mednikov A.A., Bobyr N.P., et al. // Proc. 11th Int. School of Young Scientists and Specialists Named by A.A. Kurdjumov. 2016. P. 318–324 (in Russian).
13. Бобырь Н.П. и др. Устройство для насыщения образцов материалов изотопами водорода [Device for Saturation of Material Samples with Hydrogen Isotopes]. Патент РФ № 171739. 2017.
14. Otsuka T., Tanabe T. // Mater. Trans. 2017. V. 58 (10). P. 1364–1372.
15. Ohuchi-Yoshida H. et al. // Fusion Eng. Des. 2012. V. 87 (5–6). P. 423–426.
16. Плявинь И.К., Тале А.К. // Автометрия. 2001. № 6. С. 3–23. https://www.iae.nsk.ru/images/stories/5_Autometria/5_Archives/2001/6/3-23.pdf.
17. Иванов Б.В. // Усп. хим. хим. технол. 2013. Т. 7. № 6. С. 131–135.
18. Лесина И.Г., Семенов А.А. и др. // ВАНТ. Материаловедение и новые материалы. 2019. Т. 4. № 100. С. 81–90.
19. Mao L. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2011. V. 269 (2). P. 105–110.

Application of the Radioluminography Method for the Analysis of the Distribution of Small Amounts of Tritium in Electronic-Induced Defects in Perspective Materials for Fusion Reactors

N. P. Bobyr^{1, 2}, T. A. Anfimova^{1, 3, *}, B. V. Ivanov¹, A. S. Anikin², I. G. Lesina², A. A. Semenov²,
N. E. Zabirowa², A. S. Kryukova², A. N. Bukin^{2, 3}, and A. V. Lizunov²

¹National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

²Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Moscow, 123098 Russia

³Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, Moscow, 125047 Russia

*e-mail: Anfimova_TA@nrcki.ru

Received May 30, 2022; revised June 3, 2022; accepted June 21, 2022

Abstract—The relevance of research of the interaction of hydrogen isotopes with the fusion reactor materials is primarily due to issues of economics and safety. The study of the influence of defects in materials on the accumulation of hydrogen has a special importance. In this work the radioluminography technique was used to analyze the distribution of tritium in electron-induced tungsten defects. The sensitivity of this technique to the magnitude of electron-induced defects from the point of view of detecting the accumulated tritium is established. The repeated analysis of tungsten samples was performed to assess the change in the distribution of tritium after long-term storage in the atmosphere, because this method allows to analyze repeatedly.

Keywords: tritium, radioluminography, photostimulated luminescence, tritium distribution, tungsten, electronic-induced defects

ОПТИМИЗАЦИЯ ПРОЦЕДУР ИЗГОТОВЛЕНИЯ КОМПОЗИТНЫХ ТОНКИХ ПЛЕНОК НА ОСНОВЕ ПЕРОВСКИТНЫХ НАНОКРИСТАЛЛОВ CsPbBr_3 ДЛЯ ПРИМЕНЕНИЯ В СВЕТОДИОДАХ И ФОТОПРИЕМНИКАХ НОВОГО ПОКОЛЕНИЯ

© 2022 г. А. А. Кныш^{а, *}, А. А. Ткач^а, Д. Гулевич^а, И. Набиев^{а, б}, П. С. Самохвалов^а

^аНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия

^бУниверситет Реймса, Шампань-Арденны, Реймс, 51100 Франция

*E-mail: knyshkikai@mail.ru

Поступила в редакцию 30.05.2022 г.

После доработки 08.06.2022 г.

Принята к публикации 13.06.2022 г.

В настоящее время активно развиваются фундаментальные и прикладные исследования перовскитных нанокристаллов (ПНК) состава CsPbBr_3 для использования в фотовольтаических ячейках, гибридных светодиодах, источниках единичных фотонов, базовых элементах оптических компьютеров и в других оптоэлектронных устройствах. Основной проблемой, ограничивающей применения ПНК, является их низкая стабильность в нормальных условиях. Одним из вариантов решения проблемы стабильности ПНК при контакте с атмосферой является создание композитных материалов, подразумевающих включение ПНК в полимерные матрицы. В настоящей работе представлены результаты экспериментов по созданию композитных тонких пленок (ТП) из ПНК и модифицированного полиметилметакрилата (ПММА). В частности, были изготовлены образцы стабильных во времени ТП CsPbBr_3 , обладающих высоким квантовым выходом фотолюминесценции, найдены оптимальные параметры для изготовления ТП методом вращающейся подложки (время вращения, скорость вращения, концентрация), а также получены ТП, характеризующиеся высокой однородностью пленочного покрытия. Последний фактор является важным критерием для применения ТП состава ПНК–ПММА в качестве активного слоя в гибридных светоизлучающих диодах QDLED (от англ. Quantum Dot Light-Emitting Diode). Кроме этого, поскольку ПНК являются перспективной основой сцинтилляционного покрытия детекторов, качество работы которых зависит от равномерности распределения люминофора в объеме сцинтиллятора (например, ПЗС-матриц), результаты настоящей работы могут быть использованы при разработке детекторов рентгеновского излучения медицинского назначения.

Ключевые слова: люминесценция, перовскитные нанокристаллы, CsPbBr_3 , тонкие пленки, композитные материалы, метод вращающейся подложки, квантовый выход

DOI: 10.56304/S2079562922030228

1. ВВЕДЕНИЕ

Перовскитные нанокристаллы (ПНК), с общей формулой ABX_3 , где $\text{A} = \text{Cs}^+$, CH_3NH_3^+ , $\text{HC}(\text{NH}_2)_2^+$ и др.; $\text{B} = \text{Pb}^{2+}$, Sn^{2+} и др., а $\text{X} =$ галогенид-ион [1], представляют собой новый класс материалов, который может быть успешно использован в оптоэлектронных устройствах благодаря таким своим оптическим свойствам, как высокий коэффициент оптического поглощения и значительный квантовый выход (КВ) фотолюминесценции (ФЛ).

Широкое использование ПНК в настоящее время ограничено из-за их структурной нестабильности и ухудшения фотофизических свойств при воздействии света, влаги и кислорода [2].

Особенно перспективными для использования в новых типах светодиодов (СД) и фотоприемников [3] являются ПНК химического состава CsPbBr_3 , отличающиеся высокой термодинамической стабильностью и хорошими оптическими характеристиками. Основными причинами постепенной фотодеградация ПНК указанного состава являются неполное покрытие их поверхности органическими молекулами-стабилизаторами, а также высокодинамичное поведение лигандов на границе раздела нанокристалл/среда, что делает поверхность ПНК уязвимой под воздействием атмосферной влажности [4]. Для решения подобных проблем известен ряд постсинтетических методов, а именно модификация поверхности ПНС состава CsPbBr_3 лигандами, обладающими

более высокой стабильностью, по сравнению с используемыми при синтезе, создание структур по типу ядро-оболочка, иммобилизация на поверхности ПНК олиго- и полимеров, и др. [5, 6]. В настоящей работе, для снижения негативных эффектов окружающей среды была проведена инкапсуляция ПНК в защитную полимерную матрицу с последующим отжигом образцов, что позволило получить стабильные во времени тонкие пленки ПНК, обладающие равномерным покрытием, а также высоким КВ ФЛ. Предложенная методика обеспечивает эффективную физическую защиту ПНК от воздействия как факторов атмосферы, так и от тушащих ФЛ молекул, что значительно улучшает стабильность излучающего наноматериала. В качестве полимерной матрицы нами были использованы поли (метилметакрилат) (ПММА) и его сополимер с лаурилметакрилатом (п(ММА–ЛМА)). Выбор ПММА в качестве матрицы был обусловлен его оптической прозрачностью и высокой устойчивостью полимера к влажности воздуха [7].

2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Материалы: Cs_2CO_3 (99.9%, Aldrich), PbBr_2 (99.999%, Aldrich), 1-октадецен (90%, Sigma-Aldrich), олеиновая кислота (98%, Aldrich), олеиламин (98%, Aldrich), толуол (осч., АО “Экос-1”), октан (98%, Sigma-Aldrich), метилацетат (98%, Aldrich).

Инструментальные методы исследований: тонкие пленки ПНК–ПММА состава CsPbBr_3 были изготовлены на установке спин-коатинга Spin-Coater KW-4A (Chemat). Измерение спектров люминесценции ТП проводили при помощи оптоволоконного зонда, подключенного к спектрофлуориметру Cary Eclipse (Agilent). Исследования временной стабильности флуоресценции перовскита проводили путем измерения КВ ТП с использованием интегрирующей сферы. Микроструктуру ПНК исследовали методом просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения на приборе JEM-2100F (JEOL, Япония) при ускоряющем напряжении 200 кВ.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

3.1. Синтез перовскитных нанокристаллов CsPbBr_3

ПНК состава CsPbBr_3 были получены методом коллоидного синтеза в две стадии. На первом этапе проводили реакцию взаимодействия Cs_2CO_3 и олеиновой кислоты в октадецене в токе аргона при температуре 150°C , в результате чего был синтезирован олеат цезия. Далее, полученный прекурсор инжектировали при температуре 180°C в раствор рассчитанных количеств бромида свинца, олеиновой кислоты и олеиламина в октадецене, в результате чего получили коллоидные нанокри-

сталлы состава CsPbBr_3 . Очистку ПНК проводили путем их осаждения метилацетатом, сопровождаемым центрифугированием и перерастворением в толуоле.

3.2. Синтез полимерных матриц

Изготовление полимерных матриц на основе смеси метилметакрилата и лаурилметакрилата осуществляли методом радикальной полимеризации соответствующих мономеров, в соотношении 2 : 1, в растворе толуола с использованием 0.5 мол. % азобисциклогексанкарбонитрила (ACHN) в качестве термоинициатора. После проведения полимеризации в инертной атмосфере при 95°C в течение 10 ч, полученный полимер осаждали добавлением избытка метанола, отделяли от маточного раствора декантированием и высушивали на плитке при 100°C в течение 3 ч.

3.3. Получение тонких пленок

Химическую очистку стеклянных подложек от органических загрязнений проводили в два этапа. Подложки помещали в смесь концентрированной серной кислоты и дихромата калия (хромовая смесь) на 15–20 мин, омывали проточной водой и опускали в смесь концентрированных азотной HNO_3 и соляной HCl кислот, взятых в соотношении 1 : 3 по объему (царская водка), на 30–40 мин. Далее, каждую подложку промывали деионизированной водой, после чего высушивали в сушильном шкафу при температуре $100\text{--}110^\circ\text{C}$ в течение 1.5–2 ч. Для формирования ТП, приготовленные смеси наносили на стеклянную подложку методом вращающейся подложки (спин-коатинга) [8] при определенной скорости ($\omega_{\text{вр}}$) и времени ($\tau_{\text{вр}}$) вращения подложки. Тонкие пленки ПНК готовили с использованием коллоидных растворов CsPbBr_3 с концентрацией 20 мг/мл в толуоле или октане. На предварительно очищенное стекло наносили 80–100 мкл раствора, после чего пленки формировали методом спин-коатинга при $\omega_{\text{вр}} \sim 2000$ об/мин и $\tau_{\text{вр}} = 60$ с. Для улучшения люминесцентных свойств ТП также применяли технологии отжига, благодаря чему из пленок выпаривается лишний захваченный растворитель и происходит релаксация их механических напряжений за счет изменения конформации лигандов [9]. После нанесения раствора ПНК тонкие пленки отжигали при 70°C в течение 30 мин.

Помимо ТП на основе чистых ПНК состава CsPbBr_3 , в настоящей работе также были исследованы композитные ТП, представляющие собой смеси полимеров и нанокристаллов, а также двухслойные ТП, где поверх исходной пленки ПНК наносили дополнительный стабилизирующий слой полимеров. Для этих целей в работе были использованы как чистый ПММА, так и его аналог — со-

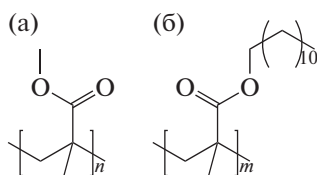


Рис. 1. Структурные формулы ПММА (а) и ПЛМА (б).

полимер метил- (рис. 1а) и лаурил- (рис. 1б) метакрилат в соотношении 2 : 1 (п(ММА–ЛМА)), которые предназначены для “механической” стабилизации и инкапсуляции ПНК в полимерную матрицу.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ

В результате реакций двухстадийного коллоидного синтеза в работе были получены образцы ПНК состава CsPbBr_3 , характеризующиеся достаточно высоким КВ, достигающим 70% (измерения проведены относительно флуоресцеина). Спектры ФЛ и поглощения полученных образцов приведены на рис. 2а. Полная ширина пика фотолюминесценции (513 нм) на полувысоте составила 19.0 нм. По микрофотографиям просвечивающей электронной микроскопии (рис. 2б), можно сделать вывод, что нанокристаллы полученных образцов имеют преимущественно кубическую форму, а также характеризуются высокими степенями кристалличности и монодисперсности.

Предварительные эксперименты по изготовлению ТП на основе чистых ПНК были проведены при $\omega_{\text{вр}} = 1500$ об/мин и $\tau_{\text{вр}} = 45$ с, при этом полученные образцы характеризовались неравномерностью покрытия, и, кроме того, были подвержены быстрой деградации из-за воздействия окружающей среды.

Для нанесения инкапсулирующего слоя использовали раствор ПММА в ацетоне, поскольку данный метод активно используется при стабилизации и защиты слоев активных слоев на основе квантовых точек в гибридных светодиодах [10]. Слой ПММА наносили методом спин-коатинга из раствора полимера в ацетоне, концентрацию которого варьировали от 1 до 1.5 мг/мл [10, 11]. Нанесение слоев ПММА проводили в диапазоне скоростей $\omega_{\text{вр}}$ от 1000 до 3000 об/мин. В результате эксперимента оказалось, что нанесение слоя ПММА из раствора в ацетоне поверх чистых ПНК приводит к разрушению слоя ПНК и дальнейшей деградации нанокристаллов (рис. 3а, 3б). Нанесение слоя ПММА на слой ПНК из раствора в октане (что могло бы снизить напряжения в пленке ПНК из-за высокой полярности ацетона) также не привело к удовлетворительному результату (рис. 3в, 3г). В результате нами было принято решение готовить гибридные тонкие пленки нанесением слоя ПММА на слой ПНК из раствора в толуоле.

В результате проведенных экспериментов нами были получены образцы тонких пленок ПНК, покрытых полимерным слоем, наносимым из растворов с различными массовыми долями ПММА.

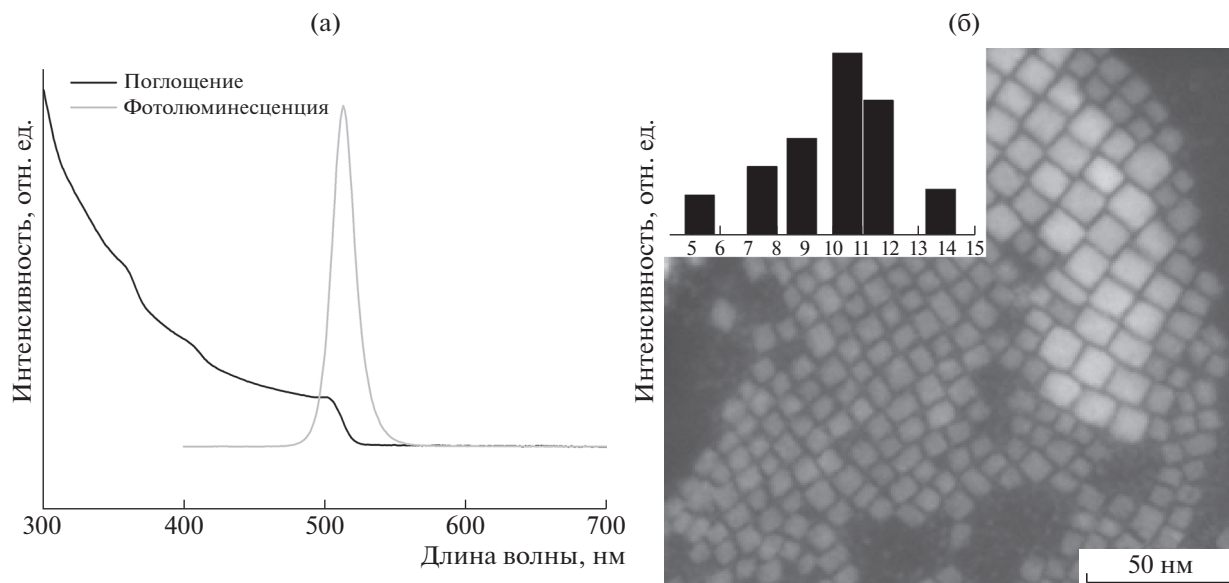


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции и поглощения ПНК состава CsPbBr_3 в растворе (а), снимок сканирующей просвечивающей электронной микроскопии ПНК CsPbBr_3 (б), на вставке: распределение ПНК по размерам [nm] (ось абсцисс).

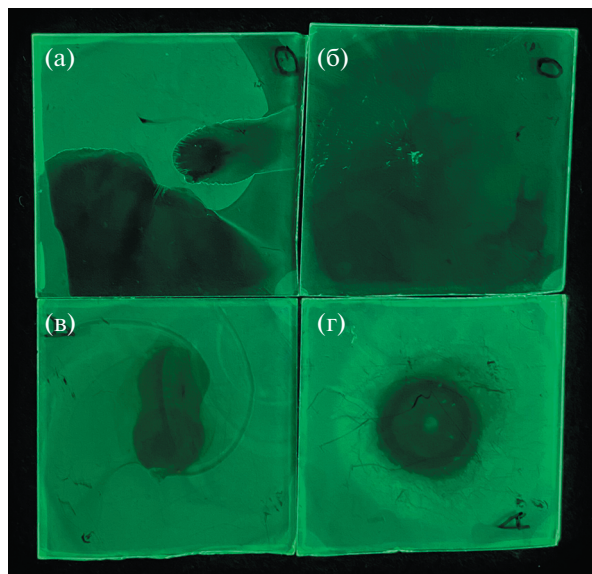


Рис. 3. Тонкие пленки ПНК при различных параметрах нанесения: нанесение на слой ПНК состава CsPbBr_3 слоя ПММА в октане (а–б) и ПММА в ацетоне (в–г).

Фотографии изготовленных образцов и их спектры ФЛ приведены на рис. 4.

Из фотографий, приведенных на рис. 4в и 4г, видно, что нанесение ПММА на слой ПНК из раствора в толуоле приводит к частичному смыванию слоя ПНК. Это делает поверхность изготовленных ТП неоднородной, со значительным увеличением интенсивности ФЛ к краю пленки. При этом в образцах, изготовленных с приме-

нием растворов ПММА в толуоле при меньшей концентрации полимера (рис. 4а и 4б), этот эффект не наблюдается. Из приведенных на рис. 4 спектров следует, что наибольшей интенсивностью ФЛ характеризуется образец двухслойной пленки, изготовленный с использованием 0.1%-го раствора ПММА в толуоле, а минимальную интенсивность — образец, полученный с использованием 7%-го раствора ПММА в толуоле. Такая тенденция снижения интенсивности ФЛ при увеличении массовой доли ПММА в толуоле может быть связана с частичным смыванием верхнего слоя исходной пленки ПНК более вязким раствором, что приводит к общему уменьшению количества люминофора в пленке. Максимум интенсивности ФЛ образца ТП, изготовленного нанесением 7%-го раствора ПММА в толуоле на слой ПНК, сдвинут на 5 нм относительно среднего значения $\lambda_{\text{макс}}$ (ФЛ) нм, при среднем значении ширины максимума ФЛ на полувысоте равном 21 нм. При этом, $\lambda_{\text{макс}}$ (ФЛ) образца с максимальной интенсивностью ФЛ совпадает со средним значением $\lambda_{\text{макс}}$ (ФЛ). Таким образом, можно заключить, что при увеличении массовой доли ПММА в исходном растворе в толуоле происходит снижение интенсивности флуоресценции ТП. Предположительно, полученные результаты могут быть обусловлены неоднородностью поверхности, что влияет на качество ТП. С другой стороны, в процессе создания ТП возможно изменение квантового выхода ФЛ самих нанокристаллов, причем как в сторону его уменьшения, так и увеличения. При этом, корреляции между интенсивностью и значением квантового выхода ТП не наблюдается.

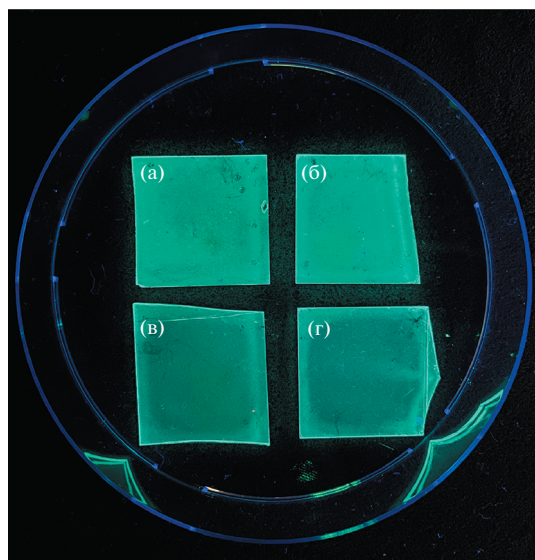
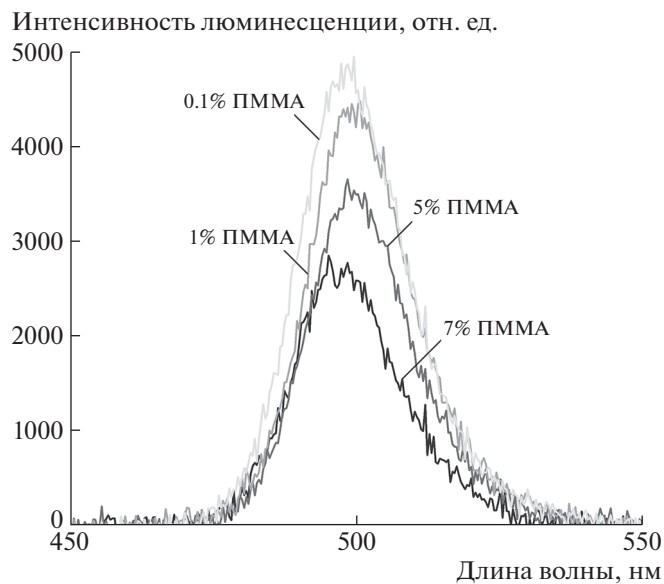


Рис. 4. Спектр фотолюминесценции тонких пленок ПНК CsPbBr_3 при различных концентрациях ПММА в толуоле (слева), тонкие пленки ПНК с соотношениями ПММА в толуоле по массе 0.1 (а), 1 (б), 5 (в), 7% (г) при $\omega_{\text{вр}} = 1500$ об/мин и $\tau_{\text{вр}} = 45$ с (справа).

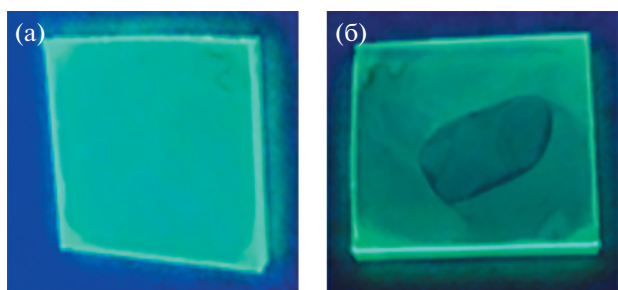


Рис. 5. Внешний вид образцов: однослойной тонкой пленки ПНК состава CsPbBr_3 (а), двухслойной ТП с нанесением поверхностного слоя чистого сополимера p(MMA-LMA) на слой ПНК состава CsPbBr_3 (б).

Далее, нами были изготовлены образцы двухслойных ТП, состоящих из слоя чистого ПНК состава CsPbBr_3 и поверхностного слоя сополимера p(MMA-LMA) (рис. 1б), который позволяет дополнительно стабилизировать изготовленные ТП и защитить инкапсулированные ПНК от воздействий окружающей среды. Действительно, указанный сополимер обладает лучшей фазовой совместимостью с поверхностью ПНК, по сравнению с чистым ПММА, из-за наличия у третьей части его мономерных звеньев длинного алифатического фрагмента, который может напрямую встраиваться в слой поверхностных лигандов нанокристаллов. Слои сополимера наносили на слой ПНК при скорости коатинга $\omega_{\text{вр}} = 1800$ об/мин и времени $\tau_{\text{вр}} = 60$. Было установлено, что, как и в случае с чистым ПММА, нанесение слоя сополимера p(MMA-LMA) описанным выше способом приводит к разрушению нижних слоев ПНК (рис. 5б).

Таким образом, нами показано, что нанесение дополнительного слоя полимера на слой ПНК не позволяет получить ТП с качественным покрытием. Для решения этой проблемы, нами было принято решение изготовить образцы композитных ТП, состоящих из смесей ПНК состава CsPbBr_3 и матрицы ПММА или сополимера p(MMA-LMA) .

В предварительных экспериментах, нами были приготовлены смеси растворов ПНК состава CsPbBr_3 в октане и ПММА в толуоле (растворимость ПММА в октане является крайне низкой). Массовая доля ПММА по отношению к ПНК состава CsPbBr_3 в стоковых растворах составляла 10 и 20%. Композитные тонкие пленки ПНК/ПММА формировали при $\omega_{\text{вр}} = 2000$ об/мин и $\tau_{\text{вр}} = 60$ с. Изготовленные при таких условиях ТП были неравномерными; последующие нанесения производились при меньших $\omega_{\text{вр}}$, составляющих 1500, 1000 и 600 об/мин, с целью определения оптимальной скорости вращения. Было установлено, что с уменьшением $\omega_{\text{вр}}$ поверхность композитных ТП становилась более однородной, однако полностью равномерного покрытия стеклянной под-

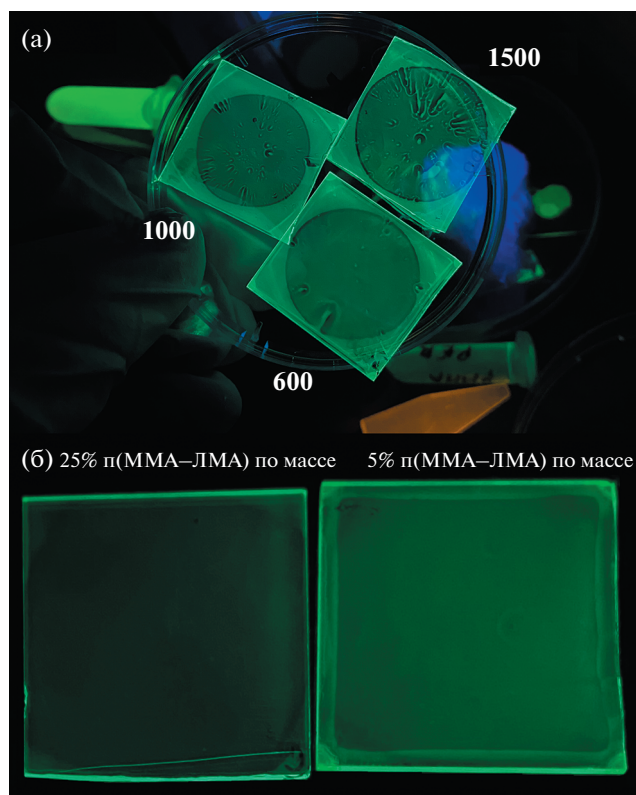


Рис. 6. Внешний вид композитных тонких пленок, нанесенных из смеси растворов ПНК состава CsPbBr_3 в октане и p(MMA-LMA) в толуоле при $\tau_{\text{вр}} = 60$ с и $\omega_{\text{вр}} = 1500, 1000$ и 600 об/мин (а) и композитные тонкие пленки, нанесенных из смеси ПНК состава CsPbBr_3 и p(MMA-LMA) в октане при $\omega_{\text{вр}} = 2000$ об/мин и $\tau_{\text{вр}} = 60$ с (б).

ложки тонкими пленками достичь не удалось (рис. 6а). Вследствие этого, нами было решено изготовить композитные ТП на основе ПНК состава CsPbBr_3 и сополимера p(MMA-LMA) . Преимуществом такого варианта является возможность растворения в октане как ПНК, так и сополимера, что снижает вероятность появления в пленках дефектов, связанных с неравномерностью испарения растворителя. Массовая доля сополимера p(MMA-LMA) , по отношению к CsPbBr_3 , в изготовленных ТП, составляла 5 и 25%. Тонкие пленки готовили при $\omega_{\text{вр}} = 2000$ об/мин и $\tau_{\text{вр}} = 60$ с. При указанных условиях, полученные ТП демонстрируют качественное равномерное покрытие. На рис. 6б представлены пленки, качество которых являлось лучшим из всех исследованных образцов.

Для исследования стабильности ФЛ-характеристик тонких композитных пленок, в течение недели проводили измерения квантового выхода ФЛ с использованием интегрирующей сферы (ИС) [12]. Преимуществом такого подхода является отсутствие чувствительности измерений к

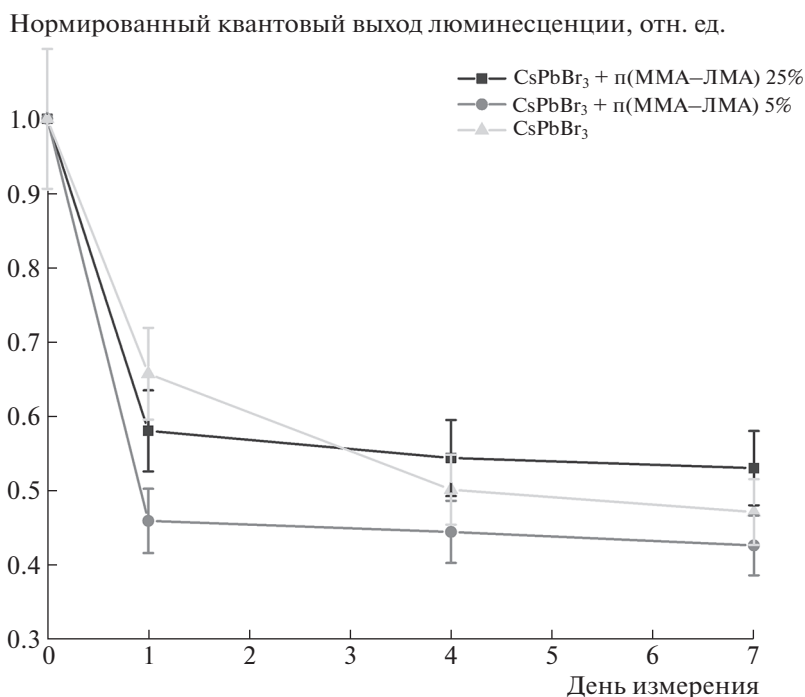
Таблица 1. Относительный квантовый выход тонких пленок ПНК состава CsPbBr_3 + п(ММА–ЛМА) с различными массовыми соотношениями компонент.

Образец	Начальный квантовый выход, %	Квантовый выход через неделю после изготовления, %
CsPbBr_3 + п(ММА–ЛМА) 25%	61.8	32.8
CsPbBr_3 + п(ММА–ЛМА) 5%	71.1	30.3
CsPbBr_3	65.8	31.0

рассеянию ФЛ и геометрии образца [13]. В качестве образца сравнения использовали ТП на основе чистых ПНК без добавления полимера (табл. 1 и рис. 7). Из приведенных данных видно, что ТП на основе чистых ПНК состава CsPbBr_3 , в пределах погрешности, демонстрирует значительный спад квантового выхода ФЛ, который в долгосрочном периоде стремится к нулю, свидетельствуя о деградации свойств ПНК, а также об их возможном разрушении. При этом остальные образцы, в пределах погрешности, демонстрируют долгосрочное постоянство квантового выхода ФЛ. Немаловажно отметить, что несмотря на уменьшении интенсивности ФЛ при увеличении массового соотношения п(ММА–ЛМА) в октане (рис. 4), величина квантового выхода ФЛ возрастает. Таким образом, можно заключить, что изготовленные композитные ТП на основе ПНК и сополимера п(ММА–ЛМА), нанесенные из раствора в октане, обладают большей долгосрочной стабильностью квантового выхода ФЛ, по срав-

нению с ТП на основе чистых ПНК, несмотря на его резкое снижение на начальном этапе.

Предложенный в настоящей работе метод изготовления ТП на основе ПНК, заключающийся в создании композитных образцов ТП из ПНК состава CsPbBr_3 и сополимера п(ММА–ЛМА) в октане, позволяет создавать высококачественные пленочные слои ПНК со стабильным спектром ФЛ, и, кроме того, демонстрирующие высокую равномерность распределения ПНК в пленке и однородную поверхность слоя. Предложенный метод изготовления ТП на основе ПНК станет полезным для формирования активных слоев гибридных светодиодов. При этом, результаты настоящей работы окажутся востребованными при разработке детекторов медицинского назначения, поскольку ПНК, обладая высоким средним атомным весом, являются перспективной основой для создания сцинтилляционных покрытий детекторов.

**Рис. 7.** Динамика изменения квантового выхода люминесценции тонких пленок состава CsPbBr_3 + п(ММА–ЛМА) с различными массовыми соотношениями компонент.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе был предложен и оптимизирован процесс изготовления тонких пленок на основе ПНК состава CsPbBr_3 , позволяющий получать ТП с высокой равномерностью пленочного покрытия, и характеризующихся повышенной стабильностью своей фотолюминесценции. Оптимальный результат был достигнут при использовании в качестве инкапсулирующего агента сополимера метилметакрилата и лаурилметакрилата, что позволило улучшить фазовую совместимость гидрофобной поверхности ПНК и полимерной матрицы. Наилучшее качество пленок было достигнуто при изготовлении ТП в форме композита, где ПНК равномерно распределены в объеме полимера, при этом оба компонента были изначально растворены в *n*-октане. Такие композитные пленки были изготовлены методом вращающейся подложки при скорости вращения $\omega_{\text{вр}} = 2000$ об/мин и времени $\tau_{\text{вр}} = 60$ с. Полученные в работе результаты, методики и материалы послужат основой для нанесения светоизлучающего активного слоя гибридных светодиодов нового поколения, а также будут использованы как активный сцинтилляционный слой в рентгеновских детекторах медицинского назначения.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации, грант № 075-15-2021-1413.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Liu R. et al. // *Nanoscale*. 2019. V. 11 (19). P. 9302–9309.
2. Yan W. et al. // *Opt. Express*. 2020. V. 28 (10). P. 15706.
3. Song J. // *Adv. Mater.* 2018. V. 30 (30). P. 1800764.
4. Rainò G. et al. // *Nano Lett.* 2019. V. 19 (6). P. 3648–3653.
5. Shamsi J. et al. // *Chem. Rev.* 2019. V. 119 (5). P. 3296–3348.
6. Chen J. et al. // *Chem. Rev.* 2021. V. 121 (20). P. 12112–12180.
7. Jiang G. et al. // *ACS Nano*. 2019. V. 13 (9). P. 10386–10396.
8. Padilha G. da S. et al. // *Polimeros*. 2017. V. 27 (3). P. 195–200.
9. Chen H. et al. // *ACS Appl. Mater. Interfaces*. 2018. V. 10 (34). P. 29076–29082.
10. Zvaigzne M. et al. // *Nanomaterials*. 2021. V. 11 (8). P. 2014.
11. Cheng X. et al. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2018. V. 51 (40). P. 405103.
12. Pica G., Bajoni et al. // *Struct. Dyn.* 2022. V. 9 (1). P. 011101.
13. Elterman P. // *Appl. Opt.* 1970. V. 9 (9). P. 2140.

Optimization of CsPbBr_3 Perovskite-Based Composite Thin Film Fabrication Processes for Use in New-Generation Light Emission Diodes and Photodetectors

A. A. Knysh^{1, *}, A. A. Tkach¹, D. Gulevich¹, I. Nabiev^{1, 2}, and P. S. Samokhvalov¹

¹National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

²Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims, 51100 France

*e-mail: knyshkikai@mail.ru

Received May 30, 2022; revised June 8, 2022; accepted June 13, 2022

Abstract— CsPbBr_3 perovskite nanocrystals (PNCs) are the focus of recent basic and applied research, with special emphasis on their use in photovoltaic cells, hybrid light-emitting diodes, single-photon sources, basic elements of optical computers, and other optoelectronic devices. The main problem limiting the use of PNCs is their low stability under normal conditions. Development of composite materials where PNCs are embedded in polymer matrices is an approach to solving the problem of the stability of PNCs contacting the atmosphere. Here, we report the results of experiments on designing composite thin films (TFs) consisting of PNCs and modified polymethyl methacrylate (PMMA). Specifically, samples of durable TFs containing CsPbBr_3 with a high photoluminescence quantum yield have been engineered, optimal parameters (including the spinning time, spinning rate, and concentration) for the spin-coating fabrication of the TFs have been found, and the TFs with a highly homogenous film coating have been obtained. This last factor is an important criterion for the use of PNC–PMMA composite as an active layer in quantum dot light-emitting diodes (QDLEDs). In addition, since PNCs are promising as a basis for the scintillating coating of detectors, whose performance depends on the homogeneity of the luminophore distribution within the scintillator (e.g., a CCD array), the results of this study could be used in developing X-ray detectors for medical applications.

Keywords: luminescence, perovskite nanocrystals, CsPbBr_3 , thin films, composite materials, spin-coating method, quantum yield

ИНЖЕНЕРНОЕ ПРОЕКТИРОВАНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКОЙ АППАРАТУРЫ

УДК 681.385

УСТАНОВКА ДЛЯ ДИАГНОСТИКИ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ В РАЗРЯДНИКЕ С ОПТИЧЕСКИМ УПРАВЛЕНИЕМ

© 2022 г. С. Г. Давыдов^а, *, В. О. Ревазов^а, В. П. Селезнёв^а, М. С. Скоробогатых^а, Р. Х. Якубов^а

^аВсероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова, Москва, 127055 Россия

*E-mail: vnii4@vnii.ru

Поступила в редакцию 13.05.2022 г.

После доработки 13.05.2022 г.

Принята к публикации 16.05.2022 г.

В работе представлены результаты создания нового инструмента, позволяющего проводить исследования физических процессов, протекающих при работе импульсного разрядника с оптическим управлением. Получены практические данные о предельных измеряемых параметрах установки и результаты корпускулярных исследований в остаточной среде разреженного газа.

Ключевые слова: разрядник с оптическим управлением, лазерная плазма

DOI: 10.56304/S2079562922030101

ВВЕДЕНИЕ

Явление взаимодействия лазерного излучения с поверхностью металлов, приводящее к образованию лазерной плазмы, имеет как научный, так и прикладной интерес. Этот процесс лежит в основе коммутаторов с оптическим управлением. Ключевым преимуществом данного вида коммутатора в мощных импульсных системах, является гальваническая развязка цепей управления и коммутации и высокая стабильность работы, что повышает надежность всей системы в целом.

Для создания разрядника с оптическим управлением требуется проведение исследований в физике газового и вакуумного разряда, взаимодействия мощных импульсов лазерного излучения с веществом. Все это можно реализовать на разработанном авторами работы исследовательском комплексе, созданном во ФГУП ВНИИА.

РАЗРЯДНИК С ОПТИЧЕСКИМ УПРАВЛЕНИЕМ

На рис. 1. представлен эскиз типичной конструкции вакуумного разрядника с оптическим управлением [1]. Импульс лазерного излучения формируется лазером – 7, после чего передается в оптическую систему фокусировки – 6. Задача данного узла состоит в точной фокусировке лазерного излучения на катод – 5 разрядника. Между катодом и анодом – 4 имеется начальная разность потенциалов. После попадания импульса излучения на мишень, в области воздействия, происходит нагрев и сублимация материала катода.

Образуется приповерхностная лазерная плазма, при распространении которой нарушается электропрочность промежутка. Также в корпусе разрядника предусмотрены окно для ввода излучения – 3, диэлектрическое кольцо – 2 и технологический диск – 1, обеспечивающий лучшую механическую прочность корпуса прибора.

Управление работой газонаполненных разрядников с оптическим запуском может осуществляться двумя способами. Когда лазерное излучение фокусируется на поверхности одного из элект-

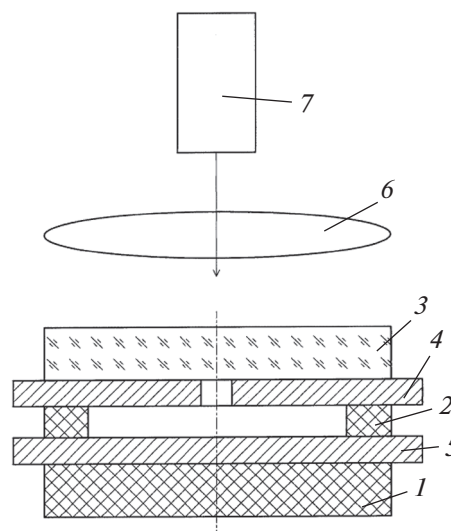


Рис. 1. Вакуумный разрядник с оптическим управлением [1].

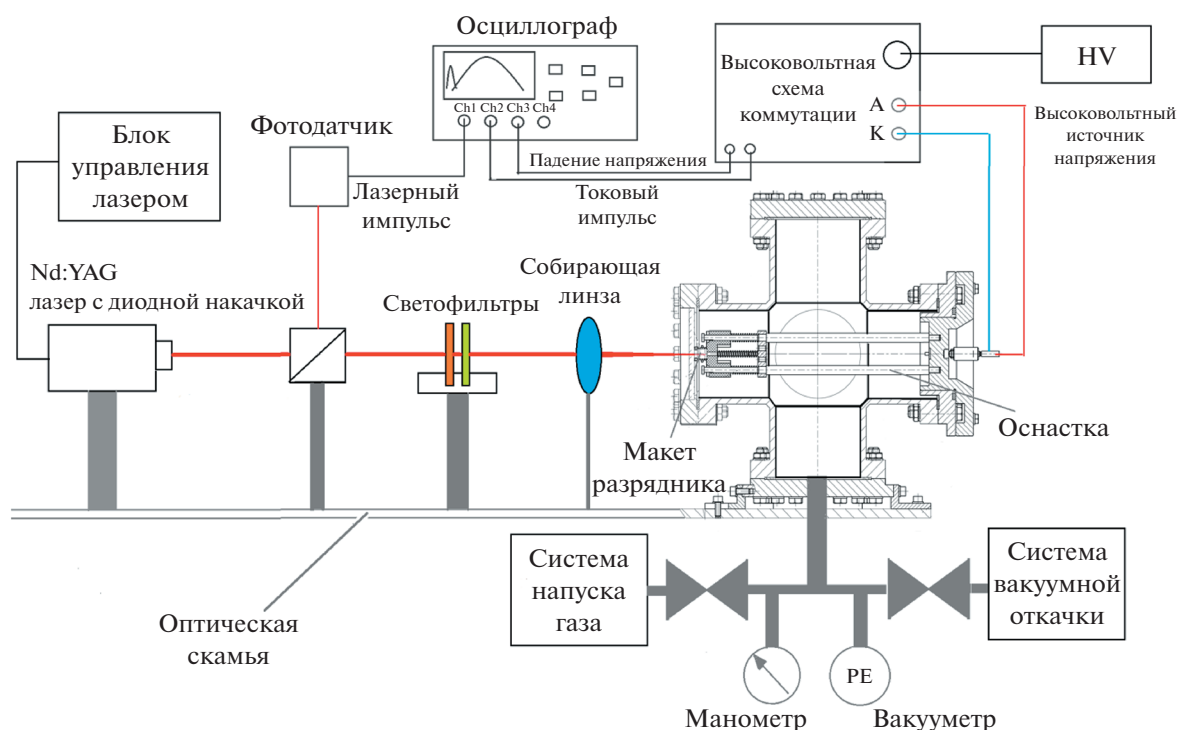


Рис. 2. Исследовательская установка.

тродов либо фокус находится непосредственно в межэлектродном промежутке. Первый способ является наиболее оптимальным для миниатюрных коммутаторов, т.к. для возникновения искры, при фокусировке в межэлектродном промежутке (2-ой способ) требуется высокая интенсивность излучения порядка 10^{11} Вт/см² (при давлении газа в приборе 1–3 бар). При воздействии лазерного излучения на мишень разрядника так же, как и для вакуумного исполнения наблюдается интенсивный нагрев и сублимация электрода. Эмиссия частиц из области нагрева приводит к образованию проводящей среды и запуску разряда схемы коммутации. Характерные времена задержки сильно зависят от интенсивности излучения, напряжения между электродами и давления газовой среды. Конструкция газового разрядника отличается использованием штенгеля вместо диска 1 с возможностью напуска газа [2].

ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКАЯ УСТАНОВКА

На рис. 2. изображена схема экспериментального стенда. Оптическая часть установки представлена импульсным Nd:YAG лазером с модуляцией добротности и оптической линией, которая необходима для регистрации фотодатчиком лазерного импульса, а также фокусировки его собирающей линзой на катод-мишень разрядника. Все элементы (лазер, линза, фотодатчик, светоотражающая пластина, светофильтры) располо-

жены на трехпозиционных манипуляторах с возможностью быстрой регулировки положения на оптической плите.

Система вакуумной откачки представлена форвакуумным и турбомолекулярным насосами. Данное решение способно обеспечить необходимый уровень вакуума.

В установке также предусмотрена система напуска газов, предназначенная для наполнения макетов разрядника средой выбранного газа или смеси газов.

Системы откачки и газонапуска подключены к вакуумной камере, которая представляет собой «шестерник», нижний фланец которого жестко закреплен на оптической плите. Камера также оснащена вакуумным датчиком, высоковольтными выводами, оптически прозрачным окном и специально разработанной оснасткой для проведения исследований в разрядниках с оптическим управлением.

Используемый твердотельный лазер формирует импульс излучения с длиной волны 1064 нм при диаметре пучка 1.5 мм, энергией до 3.5 мДж, длительности по полувысоте 5.5 нс. Эти характеристики позволяют обеспечивать максимальную интенсивность на мишени $3 \cdot 10^9$ Вт/см².

Конструкцией оптической линии предусмотрена установка различных светофильтров и линз. Первое необходимо для регулировки энергии лазерного излучения, например, уменьше-

ние до 100 мкДж. Второе служит для фокусировки с возможностью удобного позиционирования пятна на электроде при различных испытаниях разрядника.

Система вакуумной откачки способна создавать разряжение вплоть до 10^{-6} торр. Этого вакуума вполне достаточно для проведения исследований, т.к. остаточное давление большинства диффузионно-сваренных ЭВП находится на том же уровне и выше. Система напуска газа предназначена для создания газовой среды с давлением выбранного газа до 3 атм.

Описанные характеристики комплекса позволяют проводить осциллографические исследования параметров формируемых импульсов, зондовые исследования лазерной плазмы, эксперименты по испытаниям разборных и диффузионно-сваренных разрядников.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

С помощью созданной установки были получены новые экспериментальные данные, которые позволили провести исследования и выявить основные механизмы, обеспечивающие работу разрядников с оптическим управлением.

В первой группе экспериментов, которая более подробно описана в работе [3] представлены результаты исследований с электродной системой, выполненной из сплава титана. Получена зависимость времени задержки начала разряда в цепи от интенсивности лазерного излучения при остаточном давлении в вакуумной камере 10^{-3} – 10^{-5} торр. За начало отсчета задержки принимался уровень 0.5 временного профиля лазерного импульса, который снимался с фотодатчика. При интенсивностях более $2 \cdot 10^8$ Вт/см² задержка не превышала 20 нс и наблюдались стабильные коммутации в выбранном диапазоне давлений с джиттером 1–2 нс. При интенсивности $5 \cdot 10^7$ Вт/см² задержка составляла 50 нс, а джиттер возрастал до 10 нс. Таким образом, данные, полученные в эксперименте, определяют пороговую интенсивность, необходимую для стабильной работы прибора, минимального джиттера, при использовании электродной системы из сплава титана. Также видно, что задержка с учетом погрешностей не зависит от давления остаточной среды в диапазоне 10^{-3} – 10^{-5} торр. При увеличении интенсивности до $3 \cdot 10^9$ Вт/см² наблюдалось значительное уменьшение задержки до 5 нс. При таких интенсивностях возможен эффект ионизации остаточных газов (с большой вероятностью азота) квантами УФ излучения лазерной плазмы, что приводит к более быстрому механизму возникновения разряда в цепи. В работе [3] также продемонстрирован широкий диапазон межэлектродных напряжений 0.25–5 кВ, при которых может

работать вакуумный разрядник, интенсивность поджига при этом составляла $7 \cdot 10^8$ Вт/см².

Дальнейшие результаты корпускулярных исследований [4] лазерной плазмы в вакууме с использованием одиночного электростатического зонда показали наличие характерных трех групп частиц. Первая группа возникала практически синхронно с импульсом лазерного излучения, вторая группа – через ~ 150 нс (пик сигнала с зонда), третья – ~ 500 нс. Интенсивность излучения на поверхности мишени составляла $\sim 10^9$ Вт/см², $P \sim 10^{-4}$ торр. Для первой группы частиц на пике сигнала с зонда рассчитаны следующие параметры плазмы $T_e \sim 6 \pm 2$ эВ, $n_e \approx 6 \cdot 10^{16}$ м⁻³, для второй группы: $T_e \sim 5 \pm 1$ эВ, $n_e \approx 10^{17}$ м⁻³. Для третьей группы частиц, судя по ВАХ, происходят сильные колебания, собственное электрическое поле которых превосходит поле, создаваемое в плазме зондом. При уменьшении давления до 10^{-5} торр электронная температура первой группы частиц возрастала до 20 ± 4 эВ, а концентрация падала. При увеличении давления до 10^{-3} торр наблюдалась только первая группа частиц, с электронной температурой 6 ± 5 эВ. Все это свидетельствует о механизме образования проводящей среды, связанным с ионизацией остаточных газов.

Отдельно следует отметить результаты исследований газоразрядного коммутатора с электродной системой, выполненной из сплава титана [5]. Первоначально был проведен эксперимент по снятию кривой Пашена в среде азота для нашей конфигурации электродов. Эксперимент показал отклонение от теоретической кривой Пашена для плоскопараллельной электродной системы в диапазоне $p \cdot d$: 1–100 торр · см, эти данные необходимы для точного сопоставления рабочего напряжения с напряжением самопробоя разрядника. Далее производилось исследование времени задержки начала разряда от давления в приборе при различных уровнях напряжения $(0.4–0.9)U_0$, где U_0 – напряжение самопробоя промежутка. Интенсивность излучения управления разрядником составляла $6 \cdot 10^8$ Вт/см². Удалось установить, что при давлении $(0.2–0.7)$ бар прибор стабильно работает с максимальной задержкой 20 нс, причем практически отсутствует влияние уровня напряжения между электродами. При больших давлениях наблюдается стремительный рост времени задержки разряда. Для управляемого разрядника с рабочим напряжением на уровне 3 кВ требуется электропрочность как минимум в полтора раза больше, для стабильной работы и минимальной вероятности самопроизвольного срабатывания. Такое напряжение самопробоя достигается при давлении в приборе более 1 атм. В работе [5] показана зависимость времени задержки от давления при различных уровнях интенсивности $I_{\max} \sim$

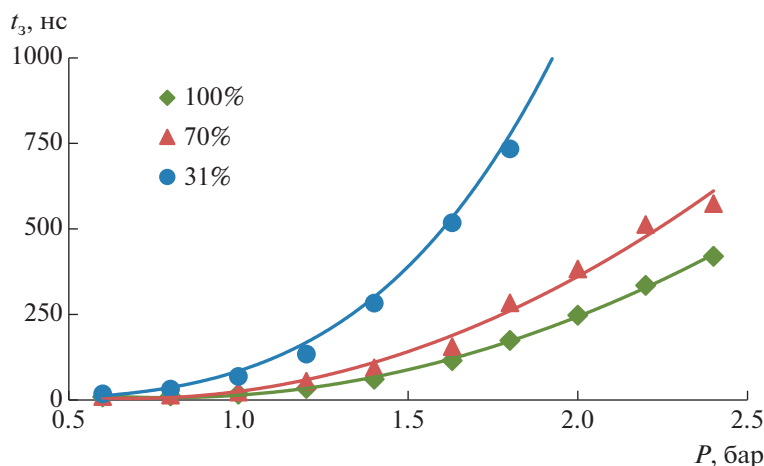


Рис. 3. Зависимость времени задержки t_3 от давления P при интенсивностях лазерного излучения $I_{\max}$, $0.7I_{\max}$, $0.3I_{\max}$ [5].

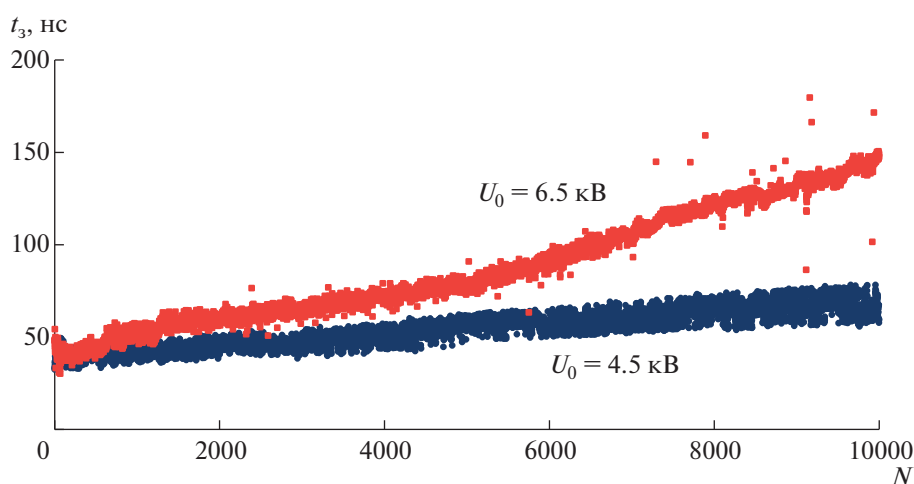


Рис. 4. Зависимость времени задержки t_3 от количества срабатываний N для разрядников с напряжением самопробоя U_0 6.5 и 4.5 кВ [5].

$\sim 6 \cdot 10^8$ Вт/см². Напряжение в межэлектродном промежутке фиксировалось и составляло 3 кВ. Результаты представлены на рис. 3.

Можно наблюдать значительное снижение времени задержки с увеличением интенсивности, а также удалось добиться стабильной работы прибора при давлении 1.4 бар ($U_0 \sim 7$ кВ). Также в статье продемонстрирована возможность управления разрядником при волоконно-оптической транспортировке излучения, при этом удалось добиться интенсивности на поверхности катода — мишени $5 \cdot 10^8$ Вт/см². Были изготовлены образцы с электропрочностью (напряжением самопробоя) на уровне 4.5 и 6.5 кВ. Которые испытывались на ресурс работы при коммутации импульсов амплитудой 250 А и длительностью 3.5 мкс. Разрядники продемонстрировали возможность приме-

нения волоконной транспортировки в качестве линии передачи управляющего излучения, а также высокие ресурсные показатели для такого компактного устройства рис. 4. В частности, для прибора с $U_0 = 4.5$ кВ максимальный разброс задержки за 10000 срабатываний составил 25 нс.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлена установка для диагностики вакуумных и газонаполненных коммутаторов с оптическим управлением, как удобный и информативный инструмент для исследований. Приведены предельные параметры, которые создаются в рабочем объеме камеры для исследований разряда, как в вакууме, так и в газовой среде. Получены зависимости временных характери-

стик разряда от давления остаточной среды и интенсивности иницирующей разряд в приборе. Сделаны выводы о наиболее вероятных механизмах формирования проводящей среды в зависимости от условий эксперимента.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. RF Patent No. 200561, No. 2019140196, Byull. Izobret. No. 31. 2020 (in Russian).
2. RF Patent No. 196890, No. 2019140194, Byull. Izobret. No. 8. 2020 (in Russian).
3. Katorov A.S., Revazov V.O., Seleznev V.P., Yakubov R.H. // Tekhnol. Elektromagn. Sovmestim. 2018. V. 67 (4). P. 3–10 (in Russian).
4. Davydov S.G., Dolgov A.N., Katorov A.S., Revazov V.O., Yakubov R.H. // Zh. Tekh. Fiz. 2020. V. 90 (6). P. 919–924 (in Russian).
5. Katorov A.S., Revazov V.O., Seleznev V.P., Yarovskiy A.I. // Tekhnol. Elektromagn. Sovmestim. 2018. V. 67 (4). P. 35–42 (in Russian).

Installation for Diagnostics of Physical Processes in a Laser-Triggered Switch

S. G. Davydov¹, *, V. O. Revazov¹, V. P. Seleznev¹, M. S. Skorobogatykh¹, and R. Kh. Yakubov¹

¹*Dukhov Automatics Research Institute (VNIIA), Moscow, 127055 Russia*

**e-mail: vnii4@vnii.ru*

Received May 13, 2022; revised May 13, 2022; accepted May 16, 2022

Abstract—The paper presents the results of the creation of a new tool that allows one to study the physical processes occurring during the operation of a pulsed switch with optical control. Practical data have been obtained on the limiting measured parameters of the installation and the results of corpuscular studies in the residual medium of a rarefied gas.

Keywords: laser-triggered switch, laser-plasma

ИНЖЕНЕРНОЕ ПРОЕКТИРОВАНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКОЙ АППАРАТУРЫ

УДК 533.5; 621.52

ОБОРУДОВАНИЕ И АППАРАТУРА ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ВАКУУМНЫХ СВОЙСТВ МАТЕРИАЛОВ И ВЫСОКОЧУВСТВИТЕЛЬНОГО КОНТРОЛЯ ГЕРМЕТИЧНОСТИ ГАЗОНАПОЛНЕННЫХ РАЗРЯДНИКОВ

© 2022 г. С. А. Бушин^а, *, С. Г. Давыдов^а, В. О. Ревазов^а, Р. Х. Якубов^а

^а *Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова, Москва, 127055 Россия*

**E-mail: vnii4@vnii.ru*

Поступила в редакцию 13.05.2022 г.

После доработки 13.05.2022 г.

Принята к публикации 16.05.2022 г.

Представлены результаты работ по разработке и созданию электрофизического оборудования, предназначенного для углубленного изучения вопросов, касающихся качественного и количественного анализа состава остаточной газовой среды в ЭВП, исследования газов при сорбции/абсорбции, а также контроля герметичности оболочек ЭВП с применением различных методик.

Ключевые слова: вакуумные свойства материалов, газовыделение, манометрический метод, метод редукции давления, диафрагма, масс-спектр, качественный и количественный анализ, контроль герметичности

DOI: 10.56304/S2079562922030083

ВВЕДЕНИЕ

Одним из наиболее актуальных направлений развития электровакуумных приборов (ЭВП) является увеличение сроков их службы. Ключевым фактором, определяющим срок службы ЭВП, является остаточная газовая среда. В процессе жизненного цикла приборов, начиная с изготовления и до эксплуатации, давление и состав газовой среды может изменяться. Эти изменения в первую очередь зависят от свойств применяемых материалов и технологии их обработки.

В рамках научно-исследовательской работы (НИР) была поставлена цель — сформировать научно-технический задел по направлению изучения вакуумных свойств материалов (ВСМ), используемых при создании и выпуске приборов. При этом необходимо было решить актуальную задачу, связанную с разработкой и созданием контрольно-технологической аппаратуры (КТА) (речь идет о создании макета) с сопроводительным методическим материалом для изучения вакуумных свойств и технологии обработки ЭВП. Следует отметить, что реализация поставленной задачи целиком направлена на создание инструментария, с помощью которого после проведения соответствующих научных исследований и оценки полученных результатов, следует, предположительно, рассчитывать на введение усовершенствований и/или уточнений в технологический

процесс производства ЭВП, направленных на повышение их технических характеристик.

ОСНОВНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ СВОЙСТВ МАТЕРИАЛОВ И МЕТОДЫ ИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Проведенный анализ показал, что наиболее важным и полезным свойством для получения оценочной информации об особенностях материала, проявляемых в вакууме, следует считать — газовыделение. Под газовыделением следует понимать несколько физических процессов, одновременно протекающих в реальных условиях: 1) десорбцию газа, адсорбированного на поверхности твердых тел, 2) диффузию и десорбцию газа, абсорбированного твердым телом, 3) испарение и сублимацию.

Установлено, что среди существующих методов для решения задач по изучению вакуумных свойств материалов с гарантированной достоверностью получаемых результатов и точностью выполняемых измерений манометрический метод и метод редукции давления являются наиболее предпочтительными для использования [1, 2]. Выбранная методологическая основа оптимально применима для решения различного спектра прикладных задач, в том числе и для оценки газосодержания при абсорбции, и для диффузии при наличии газопроницаемости материалов.

Сущность манометрического метода заключается в том, что для определения потока контролируемого газа или смеси газов путем их накопления в некотором измерительном объеме после прекращения откачки через определенные промежутки времени снимаются показания с вакуумметра и строится график, отражающий зависимость изменения давления во времени в полости, где установлен манометрический датчик. Суммарный поток определяется углом наклона касательной к кривой в ее начальной точке, поток натекания — углом наклона прямолинейного участка той же кривой к оси абсцисс. Взаимное графическое вычитание касательной к кривой и самой кривой, определяемой суммарным потоком, позволяет определить характерную динамику изменения суммарного газовыделения в вакуумной системе.

В отличие от манометрического метода, метод редукции позволяет проводить измерения газового потока в непрерывном режиме, т.е. с постоянно проводимой откачкой. Одним из основных конструктивных элементов при реализации метода редукции является использование калиброванного сопротивления (диафрагмы). При установке диафрагмы на пути движения потока контролируемого газа возникает разность давлений, которая измеряется с помощью манометрических преобразователей, устанавливаемых по обе стороны диафрагмы.

РЕЗУЛЬТАТЫ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОЙ РАЗРАБОТКИ

В современной практике исследований, связанных с проведением качественного и количественного анализа состава газов, выделяемых из материалов при их термообработке, существует ряд уже известных методико-технических решений. На основе информации об данных аналогах, а также результатов интеллектуальной деятельности, имеющих статус изобретений, после проведенного анализа был сделан вывод о том, что найденные технические решения не обеспечивают в достаточной степени полноту получаемой информации для решения исследовательских задач, связанных с оценкой вакуумных свойств материалов. При этом анализ проводился с учетом специфических особенностей подконтрольных параметров, среди которых — сравнительно малые удельные потоки газовыделений, низкое содержание примесей, низкие давления насыщенных паров при комнатной температуре, малые размеры и др.

В этой связи потребовалась проведение работ в поисках новых идей и технических решений, во главу угла которых была положена концепция двухпоточной измерительной системы, приме-

ненной в конструкции редукционной масс-спектрометрической установки измерения и анализа давления УИД-2 [3].

Основные положительные стороны при использовании редукции давления можно выразить следующими преимуществами. Если поток газа протекает не через одну, а через две последовательно установленные диафрагмы, при этом протекает не постоянный поток (как это предполагается изначально в методе), а изменяемый во времени, а это обеспечивается, если в камере накопления будет заключена лишь порция газа, то при наличии такой установленной пары может быть устранена часть возникающих проблем. Во-первых, устраняется проблема обеспечения рабочего диапазона давлений для датчика газоанализатора (в меньшей степени это относится к широкодиапазонным преобразователям общего давления), во-вторых, обеспечивается снижение эффекта селективности откачки из-за наличия откачных средств разных по своим физическим принципам действия, в-третьих, за счет подбора постоянной времени (частное из проводимостей выходной и входной диафрагмы) можно добиться наиболее эффективного использования образца, т.е. регламентированной длительности откачки исследуемого газа (смеси) из камеры накопления.

Кроме того, если запараллелить две измерительные ветки (двухпоточная схема), в каждой из которых разместить манометрический и масс-спектрометрический преобразователи, используя при этом единую откачную систему, то тем самым можно существенно уменьшить взаимное влияния преобразователей друг на друга и в то же время снизить влияние накальных катодов на исходный состав в камере накопления. Исходя из отмеченного выше, использование метода редукции при контроле газовой порции позволяет решить многие вопросы, касающиеся повышения точностных показателей результатов измерений.

На основе разработанной принципиальной вакуумной схемы КТА (рис. 1) и макетной КД (рис. 2а, 2б) изготовлены конструкционные элементы и узлы КТА, произведена его сборка, наладка и запуск, проведены тестовые экспериментальные исследования, разработана инструкция по определению вакуумных свойств материалов.

Основные методические положения инструкции регламентирует операции, предусматривающие подготовку макета и исследуемого объекта, вывод макета на режим измерений, загрузку образца, измерение общего давления, регистрацию, обработку и анализ полученной масс-спектрометрической информации.

Исследовательский процесс в тестовом режиме включает в себя следующие этапы: 1) загрузку образца в камеру накопления, с последующими операциями по ее предварительной, а затем уже и

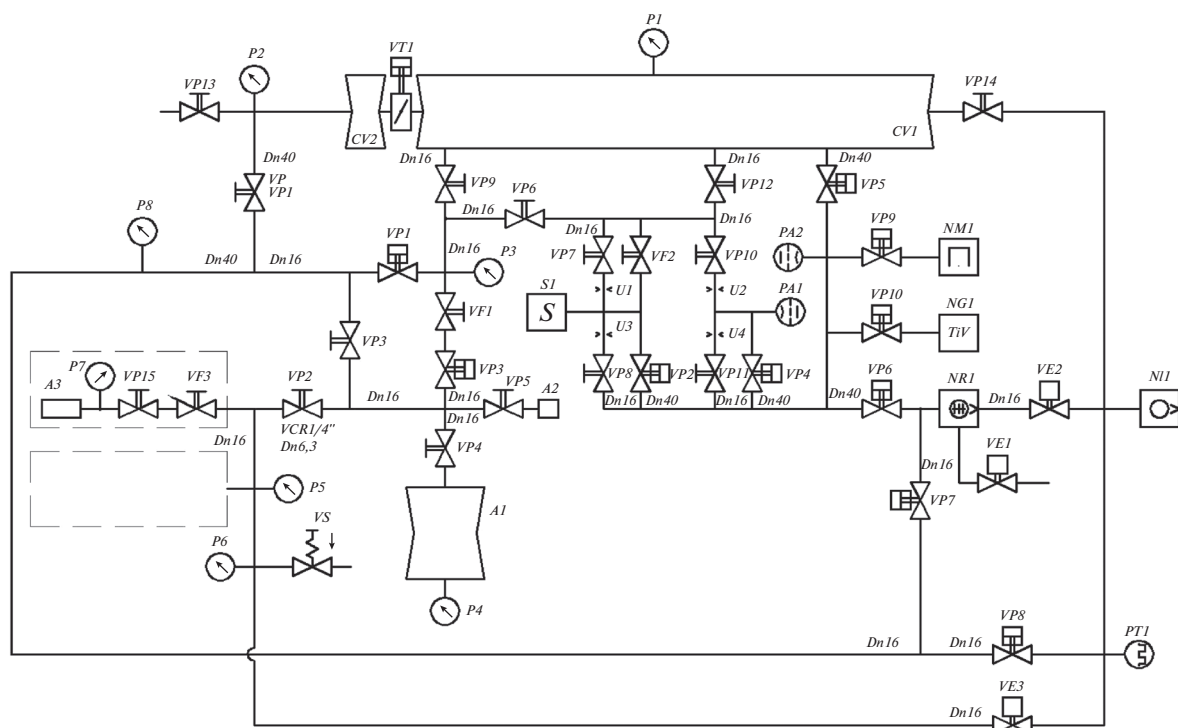


Рис. 1. Принципиальная вакуумная схема макета КТА.

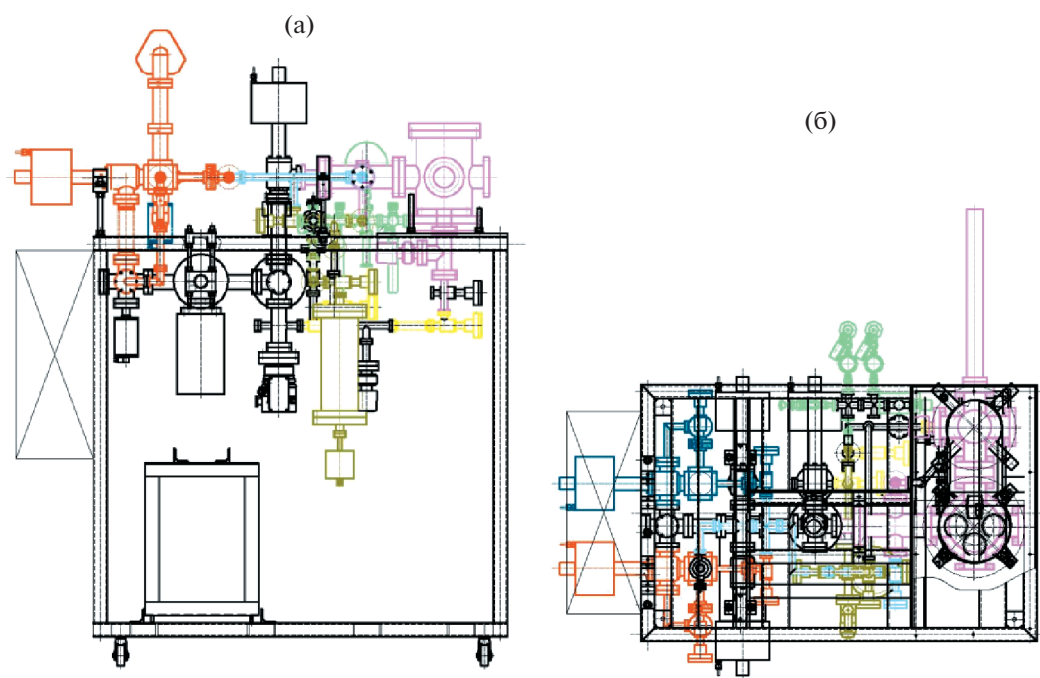


Рис. 2. Общая компоновка макета КТА: (а) вид спереди; (б) вид сверху.

высоковакуумной откачке, 2) прогрев образца до $\sim 200^\circ\text{C}$ в течение 10 мин с одновременным накоплением газовыделений, 3) сброс накопленной порции в объем измерения с непрерывной фиксацией

ее массовых характеристик и вакуумметрических данных в автоматическом режиме в течение трех-четырех минут, 4) продолжение нагрева образца с повторным накоплением газовой

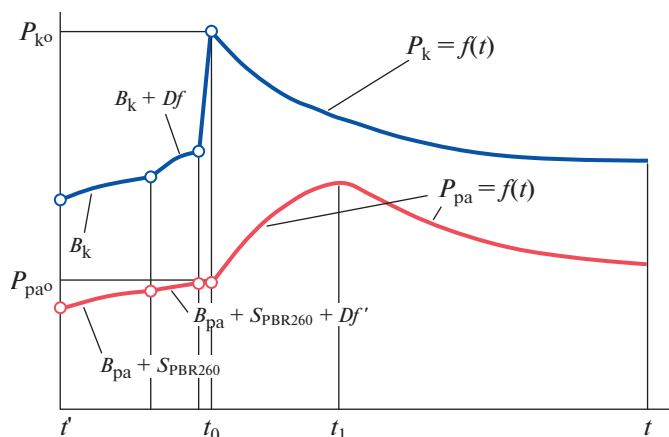


Рис. 3 Теоретическая зависимость изменения общего давления в камерах накопления (P_k) и измерения и анализа газов (P_{pa}).

порции до достижения температуры 400°C с экспозицией в 10 мин, 5) повторный сброс порции на анализ с регистрацией аналитического сигнала масс-анализатора и значений тока с коллектора вакуумметра в течение тех же трех-четырех минут 6) по истечению вышеуказанного промежутка в последующие 10 мин следует продолжение нагрева образца до достижения 600°C с одновременным накоплением порции и ее подачей на газоанализ с временным промежутком трех-четырех минут 7) снятие нагрева и остывание образца до достижения уровня комнатных температурных показателей.

Формирование конечных результатов основывается на обработке первичных данных, что предусматривает: 1) построение графиков, отражающих динамику изменения общего и парциальных давлений (характеристики ионных токов) газов на различных этапах анализа с выделением характерных участков сменяемых физических процессов (см. рис. 3, 4), 2) проведение оценки величин интенсивностей пиков I_i (A) на заданных массовых числах спектра при нагреве образца с занесением их значений в соответствующие таблицы, 3) сравнительный анализ спектров с учетом фоновой составляющей и вычисление прироста ионного тока на заданных массовых числах, 4) вычисление приращения полезного сигнала

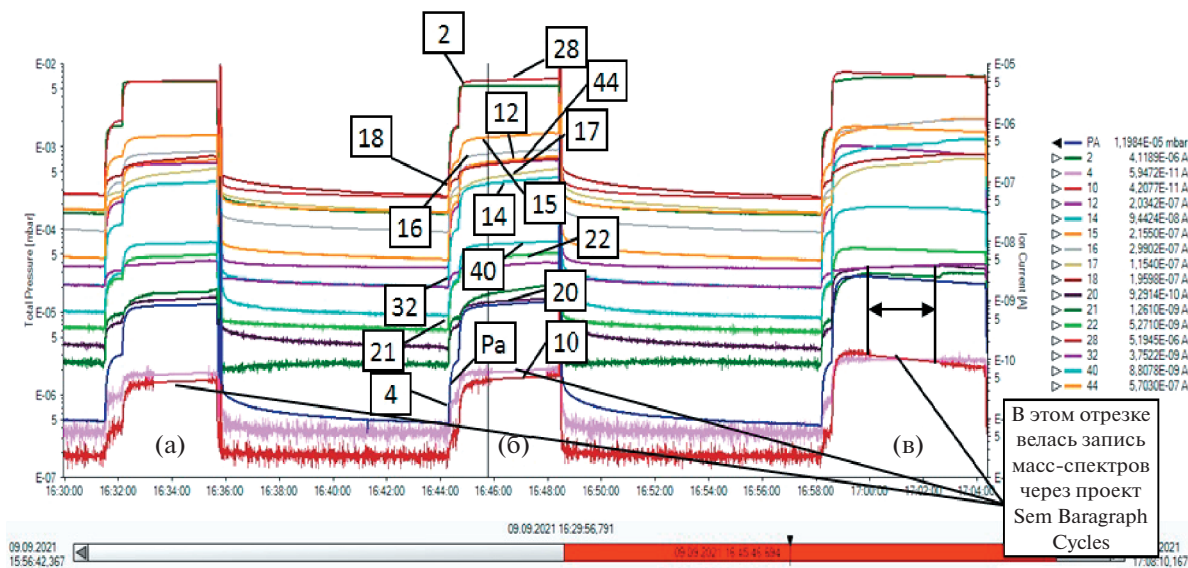


Рис. 4. Суперпозиции изменения ионного тока масс-спектрометра по массовым числам 2, 4, 10, 12, 14, 15, 16, 17, 18, 20, 21, 22, 28, 32, 40, 44 с характеристикой общего давления P_A при прогреве образца из АМц 2.0 с температурными уровнями: 200°C (а), 400°C (б) и 600°C (в) соответственно.

Таблица 1

Материал	Температура, °С	H ₂ , %	H ₂ O, %	CO, %	CO ₂ , %
АМц 2.0	200	0	0	100	0
	400	18.7	0	81.3	0
	600	38.3	61.7	0	0
ВК94-1	250	0	0	86.0	14.0
	450	100	0	0	0
	600	100	0	0	0

при оценке зависимостей общего давления, 5) проведение численного расчета величин общего и парциальных давлений газа в объеме камеры накопления с образцом на основе математических зависимостей (уравнений измерений).

На рис. 3 проиллюстрированы типовые зависимости изменения давления в объемах камеры накопления и камеры измерения и анализа, с характерными участками, отражающими следующие процессы:

1) повышение парциальных давлений фоновых газов после перекрытия откачки камеры накопления: участок — B_k и участок — $B_{pa} + S_{PBR260}$, где B_k , B_{pa} — интегрированный сорбционно-десорбционный потоки в камере накопления и измерения соответственно; S_{PBR260} — откачивающее действие ионизационного преобразователя.

2) появление дополнительных фоновых газов Df и Df' в результате перемещения механизма штока перекрывающего клапана: участок — $B_k + Df$ и участок — $B_{pa} + S_{PBR260} + Df'$;

3) появление дополнительных фоновых газов Df и Df' в результате сброса порции при нагреве материала образца: участки, следующие за — $B_k + Df$ и — $B_{pa} + S_{PBR260} + Df'$.

Согласно методики измерений, на основе расчетных значений о приращении общего давления в камере накопления, определялся итоговый результат косвенных измерений — количество выделившегося газа и скорость удельного газовыделения исследуемого образца при соответствующих режимах его нагрева.

Для проведения исследований была выполнена модернизация одного из лабораторных вакуумных стендов, являющегося аналогом макета КТА, и проведены работы по созданию комплекса мер для эффективного использования стенда посредством введения элементов автоматики. В этих целях было разработано программное обеспечение (ПО) с применением интерактивно-

го и автоматического (при запуске стенда) режимов для обеспечения управления вакуумной коммутацией с использованием пневматического шкафа системы подготовки сжатого воздуха. Модернизация установки позволила в реальном времени оперативно осуществлять регистрацию быстропротекающих процессов изменения давления в вакуумной системе с протоколированием и последующей записью на магнитный (оптический) носитель информации. Предварительно были проведены работы по градуировке манометрического и масс-спектрометрического преобразователей, выполнена тарировка диафрагм, а также измерены величины вместимостей объемов измерительной системы стенда и камеры накопления для проведения исследований [4].

В качестве примера на рис. 4а, 4б, 4в приведены результаты изменения ионного тока масс-спектрометра по заданным массовым числам с характеристикой измерения общего давления ΔP при оценке порции газа и скорости удельного газовыделения Q_i при нагреве до температуры 200С, 400, 600°С образца из АМц, предварительно подвергнутого химической полировке.

В табл. 1 представлены результаты идентификации (объемные доли газов) порций газовыделений, полученных при нагреве АМц 2.0 — диска толщиной 2.0 мм, где в качестве примера также представлены и результаты газоанализа образца диска из керамики марки ВК94-1 без технологической обработки, толщиной 2 мм, при температурах 250, 450, 600°С. Установлено, что одними из доминирующих газовых компонентов, являются водород, пары воды, окись и двуокись углерода.

Также установлено, что в составе контролируемых смесей имеются незначительные следы воздушной среды (<1%): азот, кислород, аргон.

На рис. 5 для образца АМц 2.0 представлены результаты измерений приращения общего давления с серией замеров из трех созданных порций

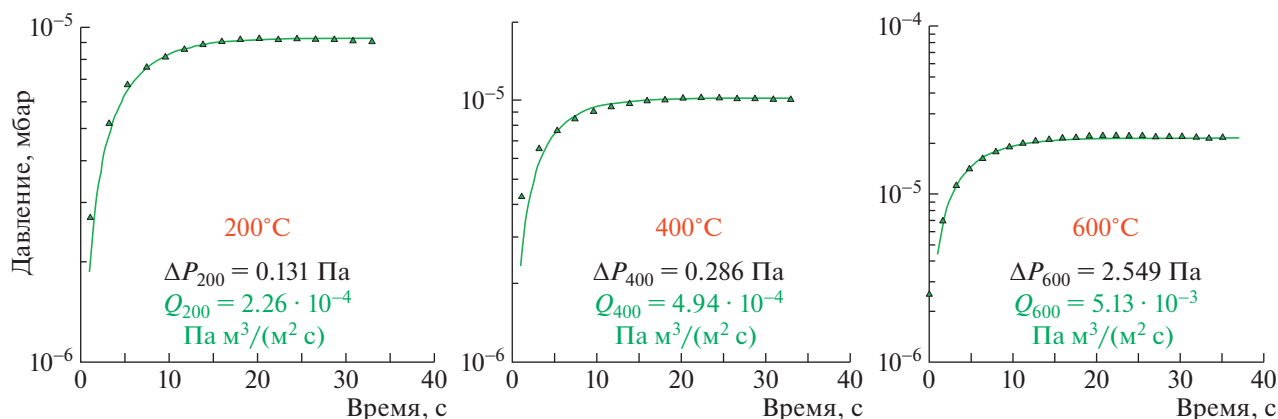


Рис. 5. Результаты измерения общего давления ΔP в порции газа и скорости удельного газовыделения Q_i при нагреве образца из АМц 2.0 до температуры: 200, 400, 600°C.

с экспозицией в 10 мин и температурами нагрева 200, 400, 600°C, а также с учетом геометрии образца представлены расчетные значения скоростей удельного газовыделения, значения которых составили $2.26 \cdot 10^{-4}$ / $4.94 \cdot 10^{-4}$ / $5.13 \cdot 10^{-3}$ Па $\cdot$ м³/(м² $\cdot$ с) соответственно.

РАЗРАБОТКА И ПРИМЕНЕНИЕ ТЕХНОЛОГИИ ВЫСОКОЧУВСТВИТЕЛЬНОГО КОНТРОЛЯ ГЕРМЕТИЧНОСТИ ГАЗОНАПОЛНЕННЫХ РАЗРЯДНИКОВ

Герметичность оболочек приборов электровакуумного производства является одним из важнейших условий, определяющих их работоспособность. Контроль герметичности сопряжен с проверкой соответствия выявляемой экспериментально степени негерметичности и устанавливаемой в КД нормой по данному показателю.

Для обеспечения современных требований по сроку хранения, рассчитанных на долгосрочную перспективу, у приборов, относящихся к газонаполненным миниатюрным разрядникам со штенгельной конструкцией, по техническим требованиям показатель степени негерметичности должен соответствовать норме на уровне $1.2 \cdot 10^{-13}$ Па м³/с (по воздуху). В полости приборов данного типа в качестве рабочего газа для заполнения используется инертный газ—неон, величина парциального давления которого близка к значению барометрического давления.

Существующая технология контроля герметичности газонаполненных разрядников включает в себя два этапа — это проведение испытаний оболочки разрядника на гелиевом течеискателе, а по окончании термообработки и заполнения рабочим газом после пережатия штенгеля — проверкой герметичности ответной части штенгеля. Ка-

чество пластичной сварки обеспечивается технологическим заделом. С этой целью периодически производится контроль инструмента пережатия и качество сварного шва на основе металлографического метода путем изготовления шлифов и исследования структуры материала в зоне контакта.

Тем не менее, такой подход не обеспечивает гарантированного отсутствия течи по месту пережатия. В результате последующих технологических воздействий на прибор может произойти как разгерметизация оболочки прибора, так и образование течи по шву, образованному пластичной сваркой.

В связи с этим возникла необходимость в практической реализации 100%-ного финишного контроля герметичности с чувствительностью, не превышающей значения заданной нормы с тем, чтобы обеспечить выполнение одного из основных принципов течеискания — проведение контроля герметичности после завершения всего цикла обработки прибора, включая термовакуумную обработку, а также всех операций, связанных с его герметизацией.

В этих целях на основе положительных результатов предварительно проведенной НИР, был разработан и создан промышленный образец вакуумного технологического оборудования (см. рис. 6), называемой установкой финишного контроля герметичности (УФКГ) [5–7].

Следует отметить, что разработанный образец, не имеет отечественных и зарубежных ближайших аналогов по следующим особенностям:

— наличие прогреваемых цельнометаллических сверхвысоковакуумных управляемых клапанов позволяет реализовать не только возможность управления процессом контроля герметичности, но и создает условия для достижения минимальных фоновых потоков, что способствует



Рис. 6. Общий вид промышленного образца установки УФКГ.

обеспечению высокого показателя чувствительности измерительной системы установки — не более $5.0 \cdot 10^{-14}$ Па м³/с;

— погрешность измерения потока утечки газа из контролируемого прибора не превышает 7.8% [8], благодаря использованию в целях калибровки измерительной системы эталонных средств в перекрывающем приблизительно в семь десятичных порядков диапазоне — от $5.0 \cdot 10^{-5}$ до 1 Па и от 1 до 133.3 Па с погрешностями измерений не более $\pm (5-10)\%$ и $\pm 2\%$ соответственно для каждого диапазона;

— оптимальный выбор исполнительных механизмов и контрольно-измерительной аппаратуры установки, обеспечивает автоматизацию всего цикла финишного контроля герметичности изделий.

При разработке опытного образца кроме задач, касающихся непосредственного изготовления, решались задачи, связанные выпуском КД, разработкой ПО и программной документации, разработкой эксплуатационной документации, включая методику финишного контроля герметичности, расчетом погрешностей контролируемой степени негерметичности, а также задачи по экспериментальной отработке методики контроля герметичности.

В основу методики контроля герметичности положен масс-спектрометрический метод с использованием способа накопления. Его содержание аналогично действиям, производимым при контроле скорости газовыделений: контролируемое изделие, размещаемое в объеме (камере накопления) сначала откачивают, после чего откачку прекращают, и через заданный интервал времени накопленную порцию рабочего газа (неон), истекающего из исследуемого объекта (при наличии течи), перепускают в изолированный от откачки объем с подсоединенным датчиком масс-спектрометра. Далее регистрирующей системой анализатора производится обнаружение контролируемого газа, его фиксация (рис. 7а) и количественный анализ: в зависимости от парциального давления неона определяется степень негерметичности контролируемого прибора (рис. 7б).

Наиболее благоприятными условиями представления образцов для проведения контроля, с точки зрения продолжительности предварительной откачки последних перед выходом установки на режим измерений, является отсутствие следов загрязнений органического происхождения на внешней поверхности объекта исследования, например, обложка компаунда (эпоксидной смолы).

Для контроля герметичности могут быть использованы любые другие приборы аналогичные

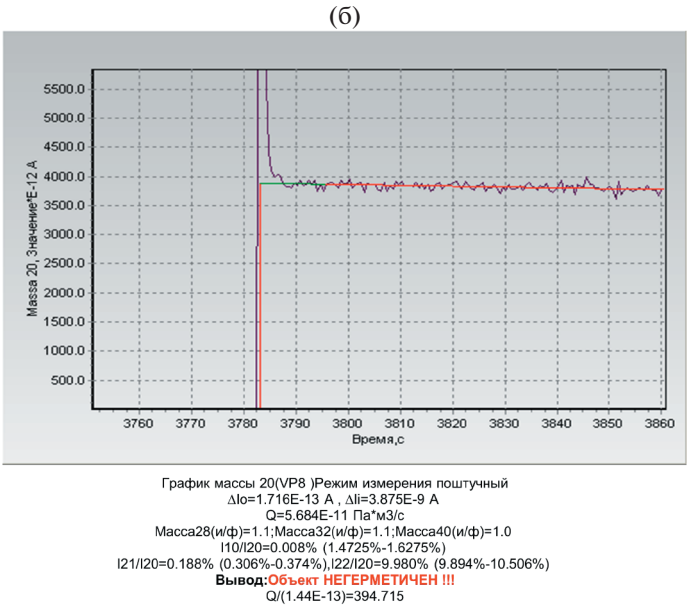
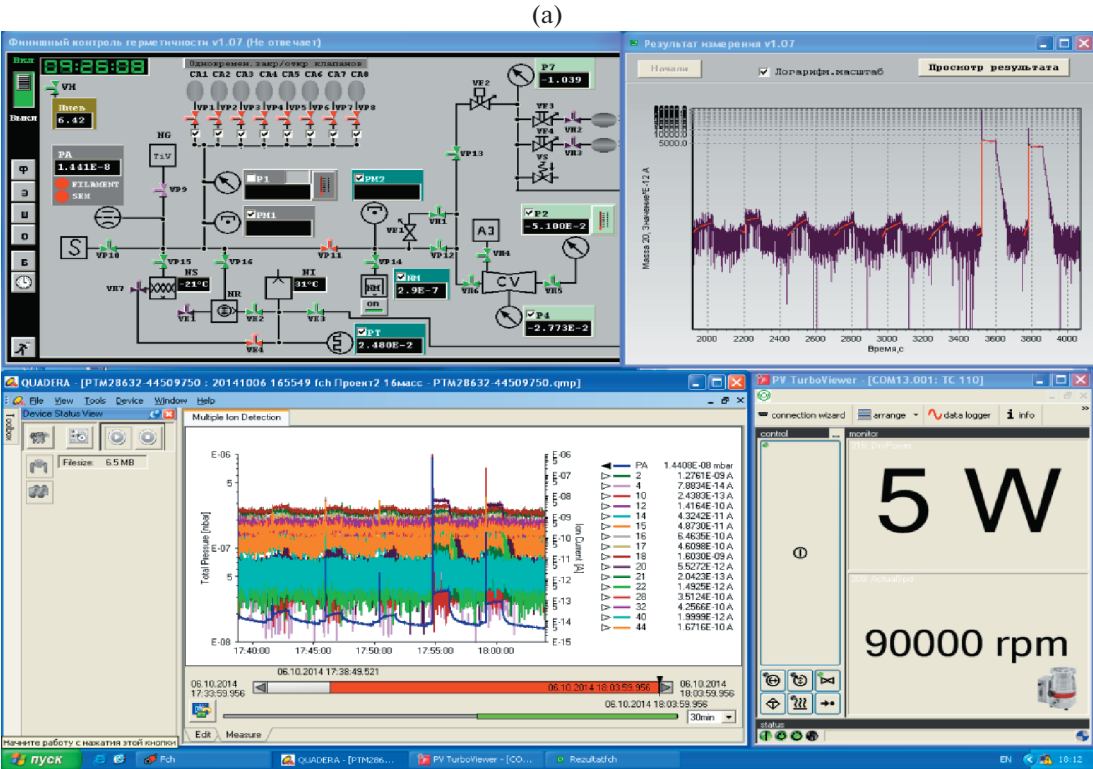


Рис. 7. Скриншот с экрана монитора программной реализации процесса фиксирования регистрирующей системой анализатора динамики изменения контролируемого газа (а) с результатами количественного анализа зависимости степени негерметичности контролируемого прибора от парциального давления неона (б).

и сходные по своим основным параметрам — геометрическим размерам, рабочему газу, материалам оболочки.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, разрабатываемое во ФГУП ВНИИА электрофизическое оборудование спо-

собствует решению поставленных задач, направленных на углубленное изучение физических процессов, протекающих в ЭВП при их изготовлении, работе и хранении, что в свою очередь является залогом для дальнейшего совершенствования и повышения надежности производимой в институте продукции.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Kuz'min V.V.* // Physics and Technology of Ultrahigh Vacuum. Collection of Articles. 1968. P. 177.
2. *Eryuhin A.V., Kuz'min V.V.* // Izmerit. Tekh. 1970. No. 5. P. 41 (in Russian).
3. *Bushin S.A., Papko V.M.* // Vakuum. Tekh. Tekhnol. 1997. V. 7 (3). P. 18 (in Russian).
4. *Kuz'min V.V.* Calibration and Verification of Vacuum Meters. 1987. Moscow: Izdatel'stvo standartov. P. 136. (in Russian).
5. RF Patent No. 101072. No. 2015502993. 2016 (in Russian).
6. *Bushin S.A.* // Vakuum. Tekh. Tekhnol. 2012. V. 22. No. 2. P. 98 (in Russian).
7. *Bushin S.A., Kozlovskaya T.I.* // Proc. 15th Asia-Pacific Conference on Non-Destructive Testing (APCNDT2017), 13–17 Nov. 2017, Singapore. http://www.ndt.net/events/APCNDT2017/app/content/Paper/31_Bushin_Rev4.
8. *Bushin S.A. et al.* // Proc. 19th Conf. Vacuum Science and Engineering. Sudak, 2012. P. 74.

Equipment and Apparatus for Studying the Vacuum Properties of Materials and Highly Sensitive Control of the Leak Detection of Gas Filled Spark Gaps

S. A. Bushin¹*, S. G. Davydov¹, V. O. Revazov¹, and R. Kh. Yakubov¹

¹*Dukhov Automatics Research Institute (VNIIA), Moscow, 127055 Russia*

**e-mail: vniia4@vniia.ru*

Received May 13, 2022; revised May 13, 2022; accepted May 16, 2022

Abstract—The results of work on the development and creation of electrophysical equipment designed for in-depth study of issues related to the qualitative and quantitative composition of the residual gaseous medium in the electrovacuum devices, the study of gases during sorption/absorption, as well as the control of the tightness of the electrovacuum devices shells using various methods are presented.

Keywords: vacuum properties of materials, gas release, manometric method, method pressure reduction, aperture, mass spectrum, qualitative and quantitative analysis, leak detection

УСКОРИТЕЛИ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ДЛЯ ЯДЕРНЫХ ТЕХНОЛОГИЙ

УДК 621.384.83

ИДЕНТИФИКАЦИЯ ИОНОВ НА МАГНИТНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ ФРАГМ

© 2022 г. Б. М. Абрамов^а, Ю. А. Бородин^а, С. А. Булычёв^а, И. А. Духовской^а, В. В. Куликов^а, А. А. Куликовская^{а, *}, А. П. Крутенкова^а, М. А. Мартемьянов^а, М. А. Мацюк^а, Е. Н. Турдакина^а

^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, 123182 Россия

*E-mail: annkul316@mail.ru

Поступила в редакцию 23.02.2022 г.

После доработки 25.02.2022 г.

Принята к публикации 28.02.2022 г.

Эксперимент ФРАГМ, проводимый на базе многоцелевого ускорительного комплекса ИТЭФ–ТВН, генерировал пучки протонов и ионов для различных исследований в области ядерной физики. В данной статье представлена методика идентификации фрагментов в пучках вторичных ионов на основе анализа корреляционных распределений по времени пролета и амплитуды сигнала с сцинтилляционных детекторов. Экспериментальные данные были получены при фрагментации пучка углерода с энергией в 300 МэВ/нуклон при сканировании по жесткости магнито-оптического канала с шагом в 50 МэВ/с. На примере изотопов бериллия были получены дифференциальные сечения процесса рождения ионов. Приводится сравнение полученных результатов с предсказаниями модели бинарного каскада.

Ключевые слова: эксперимент ФРАГМ, ион-ионные взаимодействия, перезарядка нуклонов, модель бинарного каскада

DOI: 10.56304/S2079562922030010

1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение механизмов ядро-ядерных взаимодействий — это одно из основных направлений современной ядерной физики. В последние годы, особое внимание уделяется не только исследованиям фундаментальных свойств взаимодействия ионов, но и точным феноменологическим описаниям таких процессов, что важно для таких областей прикладной науки, как радиационная защита, адронная и ионная терапии [1]. Для этих целей было создано немало программ, описывающих ядро-ядерные взаимодействия для различных энергетических диапазонов. Все они требуют экспериментальной проверки, а также совершенствования основных теоретических подходов. Многообразие экспериментальных данных по фрагментации различных ионов позволит существенным образом улучшить качество и согласованность различных моделей. Одна из задач эксперимента ФРАГМ состояла в точных измерениях выходов фрагментов при энергиях от 0.2 до 3.2 ГэВ/нуклон. Измерения проводились по фрагментации ионов углерода на различных мишенях, причем регистрировался широкий набор родившихся частиц от пионов и протонов до изотопов углерода. Данная работа содержит описание методики выделения протонов и ионов с помощью магнито-оптического канала эксперимента ФРАГМ на экспериментальном материале,

полученном при энергии в 300 МэВ/нуклон и дополняет аналогичные работы по фрагментации ионов углерода [2–4]. В качестве примера получены экспериментальные и модельные дифференциальные сечения рождения изотопов бериллия под углом в 3.5°.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Эксперимент ФРАГМ был выполнен в Институте теоретической и экспериментальной физики (НИЦ “Курчатовский институт” — ИТЭФ) на базе многоцелевого ускорительного комплекса ИТЭФ–ТВН (Тера–Ваттный Накопитель), который ускорял пучки протонов до 10 ГэВ/нуклон и пучки ионов до 4 ГэВ/нуклон. Экспериментальная установка (рис. 1) представляет собой двухступенчатый магнито-оптический канал длиной в 42 м, расположенный под углом в 3.5° по отношению к пучку ускорителя [5]. В качестве внутренней мишени использовалась узкая вертикальная полоска из 50-мкм бериллиевой фольги, что позволяло одновременно иметь как высокую светимость за счет многократного прохождения ионов через мишень, так и малые размеры источника для полного использования высокого импульсного разрешения канала. В качестве монитора использовался телескоп из трех сцинтилляционных счетчиков, ориентированных под углом

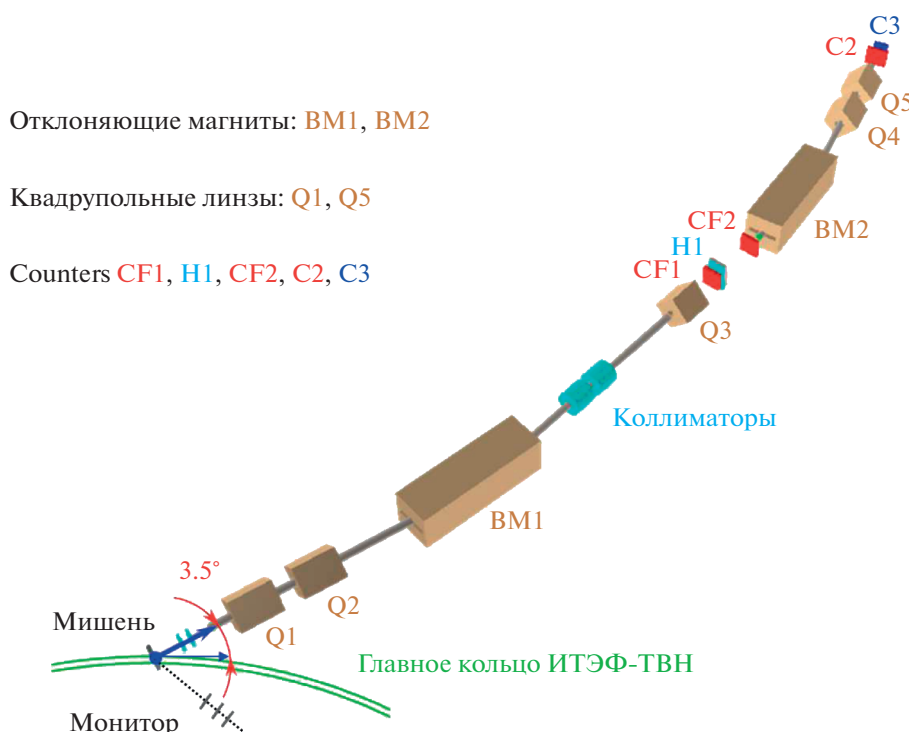


Рис. 1. Схема экспериментальной установки ФРАГМ.

в 2° по отношению к мишени. Первая ступень установки состояла из дублета квадрупольных линз Q1 и Q2, отклоняющего магнита BM1, системы коллиматоров и полевой квадрупольной линзы Q3, предназначенной для улучшения импульсного разрешения пучка и расположенной в первом фокусе канала на расстоянии в 26 м от мишени. Вторая ступень включала в себя дублет квадрупольных линз (Q4 и Q5), поворотный магнит BM2, и была предназначена для фокусировки пучка в область расположения сцинтилляционных счетчиков (C2 и C3). В первом фокусе был установлен годоскоп H1 и два сцинтилляционных счетчика CF1 и CF2. Годоскоп состоял из двадцати вертикальных и восьми горизонтальных элементов размером $20 \times 1 \times 1$ см³ и предназначался как для измерения профиля пучка, так и для уточнения импульса фрагмента до 0.2% с учетом фокусирующих свойств магнито-оптического канала. Сцинтилляционные счетчики в каждом фокусе предназначались для амплитудных и времяпролетных измерений. Каждый счетчик просматривался двумя ФЭУ с противоположных сторон для компенсации их геометрических размеров при времяпролетных измерениях. В качестве триггера использовалось совпадение сигналов со счетчиков первого и второго фокуса. По сигналу триггера необходимая информация считывалась с системы САМАС на диск компьютера.

3. МЕТОДИКА АНАЛИЗА КОРРЕЛЯЦИОННЫХ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ

В данной работе представлена методика отбора ионов (изотопов бериллия) при энергии в 300 МэВ/нуклон. Измерения были получены при сканировании по жесткости магнито-оптического канала от 0.9 до 2.8 ГэВ/с с шагом в 50 МэВ/с. Отбор фрагментов производится по корреляционным распределениям времени пролета (TDC) и амплитуды сигнала с зарядово-цифрового преобразователя (QDC) при различных настройках магнито-оптического канала по жесткости, представленные на рис. 2. Временные измерения определены таким образом, что ионы с большим импульсом имеют меньшую величину в каналах TDC. На первом этапе ионы выделяются по заряду в области, ограниченной двумя линиями, как показано на рис. 2 сверху, которые имеют одинаковый наклон в зависимости от жесткости канала. Проекция отобранных данных на ось времени позволяет выделить искомым фрагмент. На рис. 2 снизу показаны распределения времени пролета в области регистрации изотопа ^{10}Be . Видно, что сигналы от разных ионов хорошо разделены, а число зарегистрированных событий определяется суммой событий в распределении. Фон от соседних изотопов пренебрежимо мал и на рис. 2 не виден. Также рис. 2 демонстрирует возможность регистрации установкой изотопа ^{11}Be , содержа-

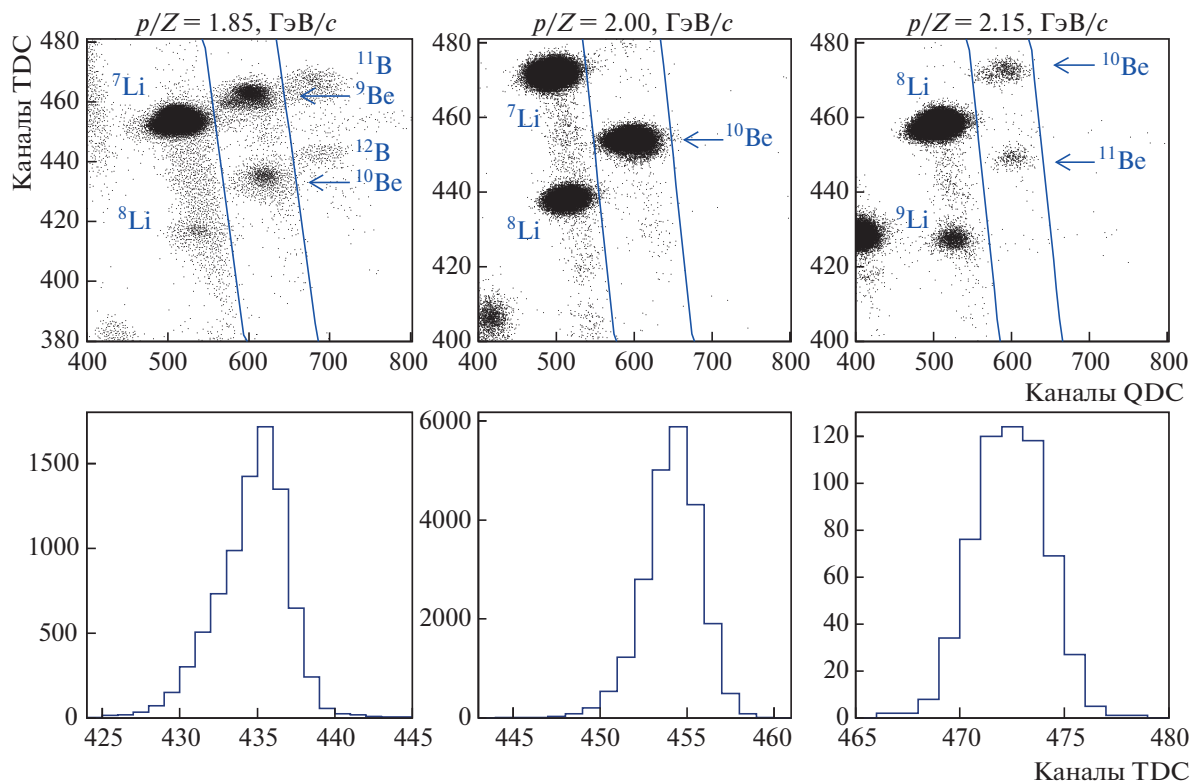


Рис. 2. На верхних графиках представлены корреляционные распределения времени пролета (TDC) и амплитуды сигнала (QDC) при различных настройках магнито-оптического канала по жесткости (p/Z). Нижний ряд графиков показывает проекцию на ось времени пролета корреляционного распределения в области регистрации изотопа ^{10}Be .

щего семь нейтронов и образующегося в процессе однократной перезарядки нуклонов налетающего ядра углерода.

4. МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОХОЖДЕНИЯ ПУЧКА ИОНОВ В ЭКСПЕРИМЕНТЕ ФРАГМ

Магнито-оптический канал установки ФРАГМ обладает особыми конструктивными особенностями. Заряженные частицы при своем движении вдоль канала проходят сквозь коллиматоры, сцинтилляционные счетчики, разрывы вакуумпровода в области счетчиков, что влияет на интенсивность и энергию пучка. Очевидно, что при проводке пучка необходимо учитывать такие процессы, как многократное рассеяние, ионизационные потери и неупругое взаимодействие частиц со средой. Для расчета эффективности регистрации протонов и широкого набора ионов было проведено моделирование эксперимента. Программа моделирования эксперимента была создана на базе приложения Geant4 (версия 4.10.07) [6]. Код программы включал точное описание геометрических параметров элементов магнито-оптического канала и сцинтилляционных счетчиков, измеренные карты магнитных полей отклоняющих магнитов и квадрупольных линз.

Для учета взаимодействия ионов с веществом был использован набор физических процессов QGS_BIC, где в качестве описания процессов неупругого взаимодействия используется модель бинарного каскада (BC) [7]. Магнитные поля и градиенты квадрупольных линз задавались в соответствии с настройкой канала на определенную жесткость (p/Z). Начальные кинематические условия для протонов и ионов включали ограничения по углу $\theta < 1^\circ$ и импульсу $dp/p = 3.5\%$, что соответствовало угловому и импульсному захвату установки. Исследуемая область по жесткости определялась стабильностью источников питания при малых токах и предельной рассеиваемой мощностью отклоняющих магнитов и была выбрана в пределах от 0.6 до 6 ГэВ/с. Регистрация заряженной частицы осуществляется в том случае, если она проходит через счетчики как в первом, так и во втором фокусе. Эффективность регистрации протонов, дейтронов и изотопов бериллия (^7Be и ^{10}Be) в зависимости от жесткости канала представлена на рис. 3. Модельные данные могут быть хорошо описаны функцией $f(x) = p_2 \exp[-p_0/(x - p_1)^2]$, где $x = p/Z$, p и Z — импульс и заряд фрагмента, p_0 , p_1 , p_2 — свободные параметры. Поправка на эффективность играет

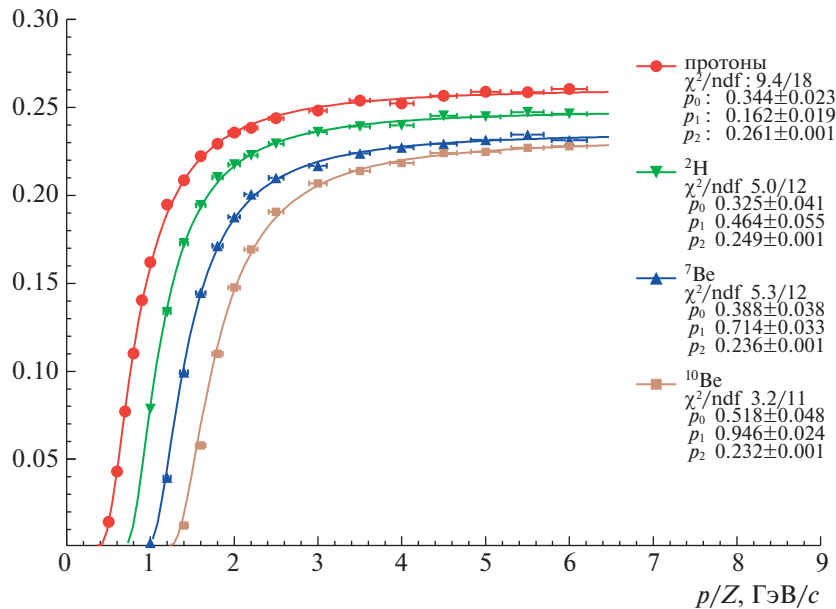


Рис. 3. Эффективность регистрации ионов магнито-оптическим каналом установки ФРАГМ.

существенную роль при жесткости до 3 ГэВ/с и может существенным образом изменить импульсный спектр ионов. В области больших значений по p/Z эффективности протонов и ионов выходят на плато, причем для протонов она примерно на 20% больше, чем для бериллия.

5. СРАВНЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ И МОДЕЛЬНЫХ ДАННЫХ НА ПРИМЕРЕ БЕРИЛЛИЯ

Относительные выходы фрагментов вычислялись нормировкой числа зарегистрированных ионов на показания монитора с учетом эффективности их регистрации. Для получения абсолютных величин дифференциальных сечений $d^2\sigma/dpd\Omega$ была проведена нормировка на полное сечение взаимодействия ионов углерода и бериллия. Следует отметить, что до сих пор не существует соответствующих экспериментальных данных, однако энергонезависимое приближение полного сечения σ_{tot} может быть вычислено по формуле [8]:

$$\sigma_{\text{tot}} = \pi r_0^2 [A_p^{1/3} + A_t^{1/3} - b_0(A_p^{-1/3} + A_t^{-1/3})]^2, \quad (1)$$

$$b_0 = 1.581 - 0.876(A_p^{-1/3} + A_t^{-1/3}),$$

где $r_0 = 1.36$ фм, $A_p = 12$ и $A_t = 9$ — массовые числа налетающего ядра и мишени. Данная формула справедлива для энергий налетающего иона превышающих 100 МэВ/нуклон [9] и дает в нашем случае $\sigma_{\text{tot}} = 776.8$ мбн. Более детальный расчет сечения, которое зависит от энергии налетающего иона дает

модель LAQGSM/MCNP6 [10], $\sigma_{\text{tot}} = 772.8$ мбн при кинетической энергии $T = 300$ МэВ/нуклон. Сечения для данной модели приведены на рис. 4 для соответствующих энергий набора данных в эксперименте. На рис. 5 представлены измеренные и модельные дифференциальные сечения в зависимости от лабораторного импульса для ^7Be , ^9Be и ^{10}Be , полученные нормировкой на сечение рождения дейтрона. Сечения перекрывают до пяти порядков величины, причем распределение каждого фрагмента имеет гауссову форму, где макси-

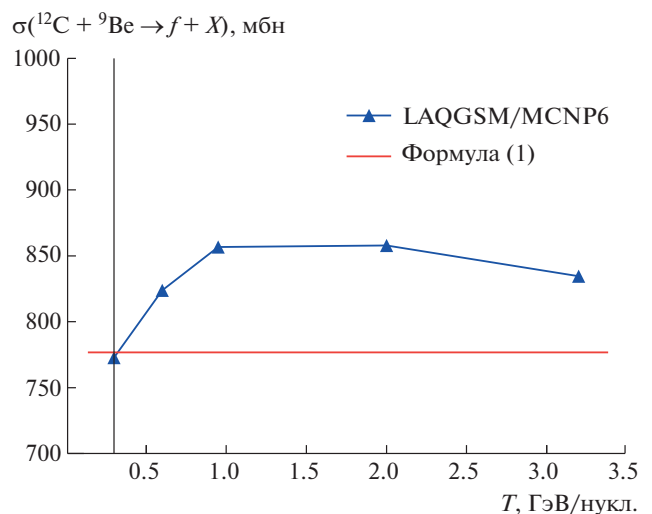


Рис. 4. Полное сечение взаимодействия ионов углерода с бериллиевой мишенью в зависимости от энергии налетающего иона.

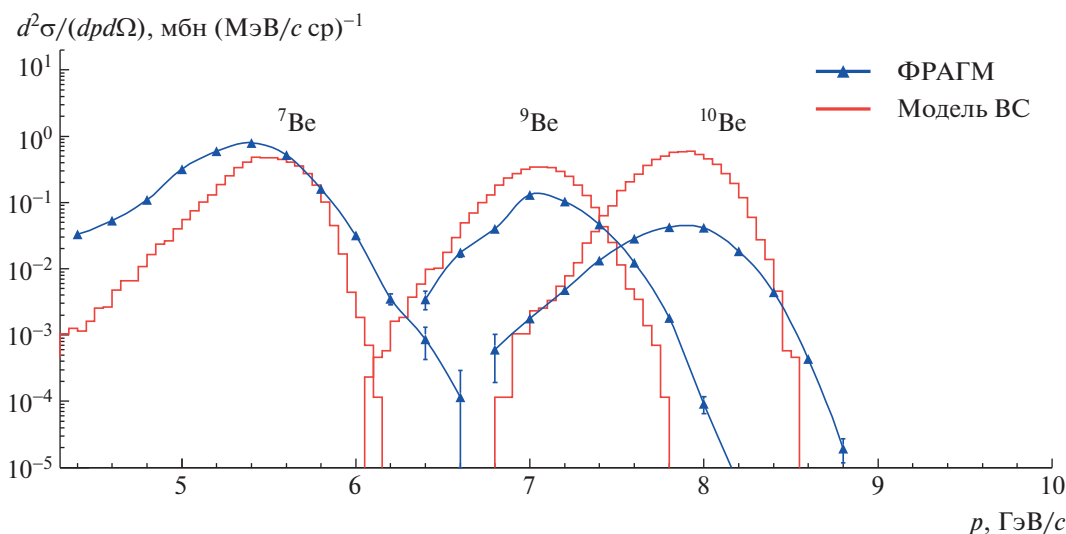


Рис. 5. Дифференциальные сечения выходов ионов бериллия в зависимости от импульса фрагмента, полученные на экспериментальных данных и модели бинарного каскада (BC).

мум в импульсе на нуклон близок к величине импульса на нуклон налетающего ядра углерода. Модельные данные получены в рамках модели ВС, причем они хорошо согласуются с экспериментальными данными в смысле среднего значения и формы распределения. Различие по величине сечения ожидаемо, поскольку в [11] показано, что предсказания моделей ион-ионных взаимодействий сильно различаются, эта разница возрастает с увеличением массы фрагмента при фиксированном угле регистрации, что связано с различиями в угловых зависимостях выхода фрагментов в моделях.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе была представлена методика идентификации фрагментов в пучках ионов на основе анализа корреляционных распределений времени пролета и амплитуды сигнала с сцинтилляционных детекторов в эксперименте ФРАГМ. Экспериментальные данные были получены при фрагментации ионов углерода с энергией в 300 МэВ/нуклон при сканировании по жесткости магнито-оптического канала с шагом в 50 МэВ/с, при анализе данных были отобраны изотопы бериллия (^7Be , ^9Be , ^{10}Be). Для определения эффективности регистрации ионов в зависимости от его импульса, было проведено моделирование эксперимента с помощью программного пакета Geant4. При вычислении дифференциальных сечений была проведена была проведена нормировка на полное сечение взаимодействия ионов углерода и бериллия. Дифференциальные сечения процесса рождения ионов бериллия в зависимости от импульса приведены совместно с теоре-

тическими предсказаниями, полученными в рамках модели бинарного каскада.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарны персоналу ускорительного комплекса ИТЭФ-ТВН и техническому персоналу эксперимента ФРАГМ за большой вклад в проведение измерений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Napoli M.D. et al. // Phys. Med. Biol. 2012. V. 57. P. 7651.
2. Abramov B.M. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2017. V. 798. P. 012077.
3. Abramov B.M. et al. // EPJ Web Conf. 2017. V. 138. P. 03002.
4. Абрамов Б.М. и др. // Ядерная физика. 2015. Т. 78. С. 403 [Abramov B.M. et al. // Phys. At. Nucl. 2015. V. 78. P. 373].
5. Абрамов Б.М. и др. // Журн. эксп. теор. физ. 2013. Т. 97. С. 509 [Abramov B.M. et al. // JETP Lett. 2013. V. 97. P. 439].
6. Agostinelli S. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2003. V. 506. P. 250.
7. Folger G., Ivanchenko V.N., Wellisch J.P. // Eur. Phys. J. A. 2004. V. 21. P. 407.
8. Barshay S., Dover C.B., Vary J.P. // Phys. Lett. C. 1975. V. 11. P. 360.
9. Sihver L. et al. // Phys. Rev. C. 1993. V. 47. P. 1226.
10. Mashnik S.G. // Eur. Phys. J. Plus. 2011. V. 126. P. 49.
11. Abramov B.M. et al. // J. Phys.: Conf. Ser. 2019. V. 1390. P. 012004.

Ion Identification Using a FRAGM Magnetic Spectrometer

**В. М. Abramov¹, Yu. A. Borodin¹, S. A. Bulychjov¹, I. A. Dukhovskoy¹, V. V. Kulikov¹,
A. A. Kulikovskaya¹*, A. P. Krutenkova¹, M. A. Martemianov¹, M. A. Matsyuk¹, and E. N. Turdakina¹**

¹*National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia*

**e-mail: annkul316@mail.ru*

Received February 23, 2022; revised February 25, 2022; accepted February 28, 2022

Abstract—The FRAGM experiment was carried out on the multipurpose accelerator complex ITEP–TWAC, which generated of protons and ions beams for various research in the nuclear physics. This article presents a technique for identifying fragments in secondary ion beams based on analysis of correlation distributions in time-of-flight and amplitude signal from scintillation detectors. The experimental data were obtained by fragmentation of a carbon beam with an energy of 300 MeV/nucleon at scanning the rigidity of the magneto-optical channel with a step of 50 MeV/c. Differential cross sections were obtained using the beryllium isotopes ion production process. The obtained results are compared with predictions of the binary cascade model.

Keywords: experiment FRAGM, ion-ion interaction, nucleon charge exchange, binary cascade model

УСКОРИТЕЛИ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ДЛЯ ЯДЕРНЫХ ТЕХНОЛОГИЙ

УДК 621.384.66

МОДЕЛИРОВАНИЕ СОЛЕНОИДА ДЛЯ ФОКУСИРОВКИ ПУЧКА ЛЕГКИХ ИОНОВ

© 2022 г. И. В. Кильметова^{a, b, *}, А. В. Козлов^a, Т. В. Кулевой^{a, b}, Ю. Б. Стасевич^a,
А. В. Зиятдинова^a, П. А. Федин^a, К. Е. Прянишников^a

^aНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, 123182 Россия

^bНациональный исследовательский университет Высшая школа экономики, Москва, 101000 Россия

*E-mail: irina.kilmetova@yandex.ru

Поступила в редакцию 28.06.2022 г.

После доработки 28.06.2022 г.

Принята к публикации 30.06.2022 г.

Ионный ускоритель — это многофункциональный инструмент, который может быть использован, в том числе, для моделирования эффектов нейтронного облучения реакторных материалов. В НИЦ “Курчатовский институт” — ИТЭФ ускоритель тяжелых ионов ТИПр (тяжело-ионный прототип) используется для моделирования радиационных повреждений в сталях и сплавах. Облучения ведутся в основном ионами железа Fe^{2+} , но при необходимости могут быть использованы и пучки ионов ванадия, тантала, углерода и многие другие. Для моделирования воздействия на реакторные конструкционные материалы продуктов ядерных реакций, необходимо в область создаваемых повреждений имплантировать водород и гелий. Для совершенствования экспериментов создается второй канал для одновременного облучения тяжелыми и легкими ионами. В работе рассматривается создание соленоида, используемого для фокусировки пучка ионов гелия из ЭЦР источника, и способ его электропитания.

Ключевые слова: соленоид, фокусировка, имитационный эксперимент, пучок ионов, ионный ускоритель

DOI: 10.56304/S2079562922030216

ВВЕДЕНИЕ

На ускорителе тяжелых ионов ТИПр (тяжело-ионный прототип) [1] проводятся эксперименты для исследования радиационной стойкости конструкционных материалов, используемых при строительстве ядерных реакторов. В ходе экспериментов с целью имитации нейтронного воздействия, используются ускоренные ионные пучки химических элементов, входящих в состав материала образца, в частности, для облучения сталей используется пучок ионов Fe^{2+} . Ускоритель ТИПр работает в импульсном режиме. Период посылок — 2 с, длительность импульса пучка — 475 мкс. Ускорение пучка происходит в структуре с RFQ до 101 кэВ/нуклон (5.6 МэВ для ионов Fe^{2+}). Имитационные эксперименты по облучению материалов ускоренными пучками тяжелых ионов позволяют активировать каскадное рождение структурных дефектов, аналогичное тому, что происходит при реакторном облучении [2].

В реальных условиях нейтронного облучения в результате реакций ядерной трансмутации в материалах образуются газообразные примеси: водород и гелий, которые накапливаются одновре-

менно с появлением радиационных дефектов [3]. Поэтому для полноты воспроизведения процессов, происходящих в материалах ядерных энергетических установок в условиях их эксплуатации, необходимо одновременное внедрение ионов водорода и гелия в область дефектообразования от основного пучка.

С этой целью в ИТЭФ разрабатывается канал второго ускоренного ионного пучка для одновременного облучения образцов пучками тяжелых и легких ионов (рис. 1). Второй канал расположен под углом 30° к существующему выходному каналу ускорителя ТИПр. Требуемая энергия имплантации для ионов He^+ варьируется от 150 до 300 кэВ, а для ионов H^+ — от 50 до 150 кэВ [4]. Для этого в качестве инжектора планируется использование высоковольтной платформы High Voltage platform с напряжением до 300 кВ. Для генерации пучка легких ионов предусмотрено использование ЭЦР источника ECR IS [5]. Для транспортировки пучка от ЭЦР источника к сепарирующему магниту ВМ используется соленоид Sol. Для транспортировки пучка без потерь в ускорительной трубке АТ используется триплет квадрупольных линз LQ

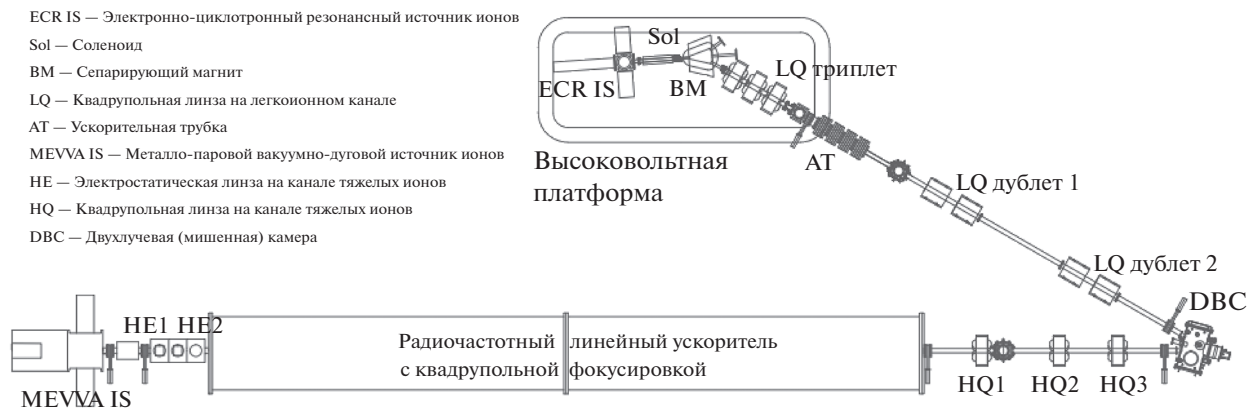


Рис. 1. Схема инжекционного комплекса на базе ускорителя ТИПр.

Triplet. Пучок, ускоряясь до необходимой энергии в АТ, транспортируется через дублиты квадрупольных линз LQ Doublet 1, 2 и направляется в мишенную камеру DBC.

Целью данной работы является проектирование модели соленоида Sol и схемы его питания. Оно проведено на основе данных, полученных из расчета динамики пучка, представленных в табл. 1.

РАСЧЕТ ЧИСЛА АМПЕР ВИТКОВ СОЛЕНОИДА

С целью снижения погрешности совмещения магнитного поля соленоида с оптической осью фокусирующего канала, а также для максимально близкого расположения обмотки к оси ионопровода, была выбрана бескаркасная конструкция соленоида. Для этого разместим обмотку на отдельной, изолированной от нее апертурной трубке, изготовленной из нержавеющей стали 12Х18Н10Т толщиной стенки 2.5 мм, которая будет пристыковываться к ионопроводу посредством торцевых фланцев. В расчетной модели магнитная апертура соленоида принята равной внешнему диаметру апертурной трубки $d_1 = 105$ мм.

Величина магнитной индукции B_z на оси тонкостенного соленоида конечной длины l может быть найдена из соотношения [6]:

$$B_z = \frac{\mu_0 IN}{2l} \left[\frac{z + \frac{l}{2}}{\sqrt{R^2 + \left(z + \frac{l}{2}\right)^2}} - \frac{z - \frac{l}{2}}{\sqrt{R^2 + \left(z - \frac{l}{2}\right)^2}} \right], \quad (1)$$

где отсчет по продольной координате z ведется от геометрического центра соленоида, $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$ — магнитная постоянная, Гн/м; I — ток в соленоиде, А; N — число витков; R — радиус намотки, м.

Полагая, что проводник диаметром $d_0 \ll R$ мотается виток к витку, имеем условие связи $l = Nd_0$.

Соотношение (1) позволяет вычислить величину индукции магнитного поля в центре соленоида и найти число ампер-витков IN , необходимое для получения заданного значения. Подставив в (1) числовые данные табл. 1, найдем число ампер-витков $IN = 129$ кА вит.

Таблица 1. Заданные параметры для расчета соленоида

Период повторений импульсов пучка T_0 , с	1
Время пролета пучка t_0 , мкс	475
Длина катушки l , мм	450
Индукция магнитного поля в центре соленоида B_z , Тл	0.35
Относительная нестабильность магнитного поля $\delta = \Delta B/B$	≤ 0.01
Диаметр пучковой апертуры d , мм	100
Допустимая рабочая температура при частоте 1 Гц T_p , °С	50

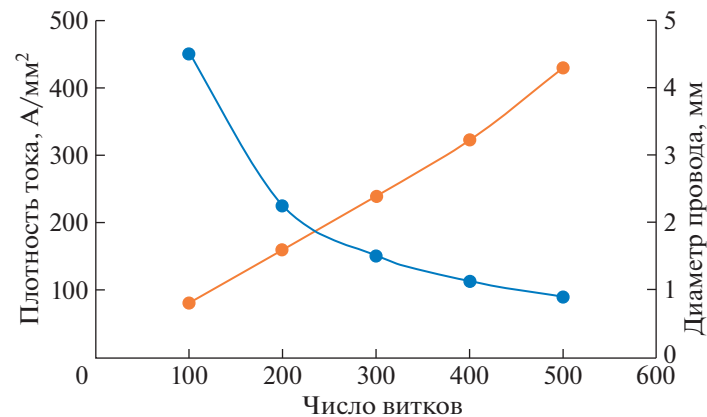


Рис. 2. Зависимости плотности тока и диаметра провода от числа витков.

РАСЧЕТ ИНДУКТИВНОСТИ И СОПРОТИВЛЕНИЯ СОЛЕНОИДА

Расчет сопротивления и индуктивности проводился для дальнейшего определения параметров разрядного контура импульсного питания. Для предварительного анализа и выбора основных параметров на основании полученного выше числа IN при заданной длине соленоида сопоставим число витков, плотность тока и сечения круглого проводника, необходимые для намотки однослойного соленоида. На рис. 2, представлены графики плотности тока и диаметра провода в зависимости от числа витков при фиксированной длине однослойного соленоида.

Анализ этих зависимостей показывает, что из-за большой плотности тока и чрезмерно высокой потребляемой мощности в таком соленоиде необходимо ввести импульсный режим питания. Однако даже ограничивая плотность тока допустимой величиной до 4 А/мм^2 (в среднем по импульсу), необходимо, кроме того, перейти к многослойной конструкции обмотки и тем самым увеличить ее сечение. Ниже приведены расчеты моделей соленоида с намоткой от двух до четырех слоев медным проводом двух типов: ПЭЛ-2 $\varnothing 2.5\text{ мм}$ и шиной ПБД $5 \times 3\text{ мм}^2$. Количество витков N_L в каждом слое обмотки с учетом коэффициента заполнения, равного 0.95, составило 166 и 76 витков в зависимости от марки провода, соответственно.

Активное сопротивление обмотки соленоида внутреннего радиуса R_l с числом слоев k можно получить из соотношения:

$$r = \frac{2\pi N_L \rho_{Cu}}{S} \sum_{n=1}^k \left[R_l + \frac{d_0}{2} + d_0(n-1) \right], \tag{2}$$

где ρ_{Cu} – удельное электрическое сопротивление меди, S – сечение провода.

Полагая, что поле в продольном направлении изменяется в соответствии с выражением (1), определим индуктивность соленоида. Расчетная модель предполагает, что индукция магнитного поля в любом поперечном сечении соленоида $z = \text{const}$ совпадает с его значением на этой оси $B(r, z) = B(0, z)$, за пределами апертуры оно равно нулю, и каждый действительный слой заменен тонкостенным. Тогда суммирование магнитных потоков, сцепленных с каждым витком обмотки [7], дает следующее выражение для индуктивности:

$$L = \frac{\mu_0 \pi R_l^2 N}{2l} \times \sum_{m=1}^k \sum_{n=1}^{N_L} \left[\frac{z_n + \frac{l}{2}}{\sqrt{R_m^2 + \left(z_n + \frac{l}{2}\right)^2}} - \frac{z_n - \frac{l}{2}}{\sqrt{R_m^2 + \left(z_n - \frac{l}{2}\right)^2}} \right], \tag{3}$$

где считается, что витки мотаются равномерно в k слоев по N_L витков в каждом, $z_n - z$ – координата n -го витка, а R_m – радиус m -го витка намотки. Результаты расчета сопротивления (2) и индуктивности (3) для всех вариантов соленоида приведены в табл. 2.

Таблица 2. Расчетные значения сопротивления и индуктивности для рассматриваемых вариантов соленоида

Параметры провода, мм	$\varnothing 2.5$			3×5		
	2	3	4	2	3	4
Количество слоев k	2	3	4	2	3	4
Сопротивление обмотки r , мОм	390	610	850	65	100	140
Индуктивность L , мГн	2.4	5.3	9.4	0.5	1.1	2

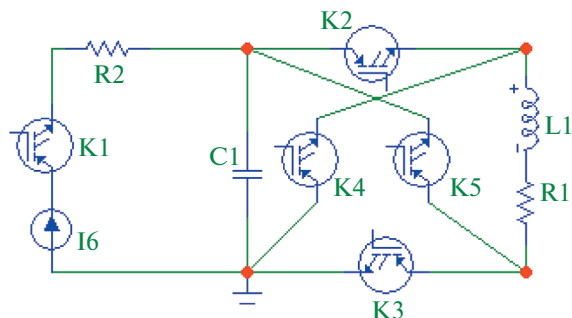


Рис. 3. Схема генератора импульсов тока соленоидов, реализующая режим рекуперации.

РАСЧЕТ ДЛИТЕЛЬНОСТИ ИМПУЛЬСА

Питание соленоидов осуществляется током резонансного разряда конденсатора в силовом колебательном контуре, в котором соленоид выполняет роль индуктивной нагрузки. Величина амплитуды синусоидального импульса тока должна обеспечивать заданное значение магнитной индукции на оси соленоидов. Длительность импульса — $\tau_{\text{и}}$ (4), равная полупериоду колебаний в контуре, выбирается из условий обеспечения заданной относительной неравномерности тока δ в течение времени t_0 пролета пучка, центр которого должен совпадать по времени с прохождением тока соленоидов через максимум.

$$\tau_{\text{и}} = \frac{T}{2} \approx \frac{\pi t_0}{2\sqrt{2}\delta}. \quad (4)$$

Подставив в (4) заданные числовые значения из табл. 1, получим $\tau_{\text{и}} = 5.3$ мс.

РАСЧЕТ ПАРАМЕТРОВ КОЛЕБАТЕЛЬНОГО КОНТУРА

Поскольку для колебательного контура без потерь длительность периода $T = 2\pi\sqrt{LC}$, то с учетом соотношения (4) можно найти выражение для вычисления емкости конденсатора и затем величины зарядного напряжения U конденсатора (5), необходимой для получения в соленоиде импульса тока амплитудой I :

$$C = \frac{t_0^2}{8\delta L}, \quad U = I\rho, \quad (5)$$

где $\rho = \sqrt{L/C}$ — волновое сопротивление контура.

Поскольку в силовых контурах питания рассматриваемых моделей соленоидов добротность $Q \geq 0.5$, то происходит перезарядка силовых конденсаторов. Для устранения этого процесса и, как следствие, для снижения потребляемой мощности источника зарядного напряжения была рассмотрена и промоделирована схема генератора импульсного питания рекуперации энергии, накопленной в индуктивной нагрузке (рис. 3). Графики тока в нагрузке и напряжения на конденсаторе, полученные в пакете моделирования Micro-Cap [8], приведены на рис. 4.

Генератор содержит источник зарядного тока I_6 , LC-контур, зарядный ключ $K1$ и две пары ключей $K2, K4$ и $K3, K5$, включаемые попарно в противофазе.

При замыкании ключей $K2$ и $K3$ происходит нарастание тока соленоидов до максимального значения и уменьшение напряжения на конденса-

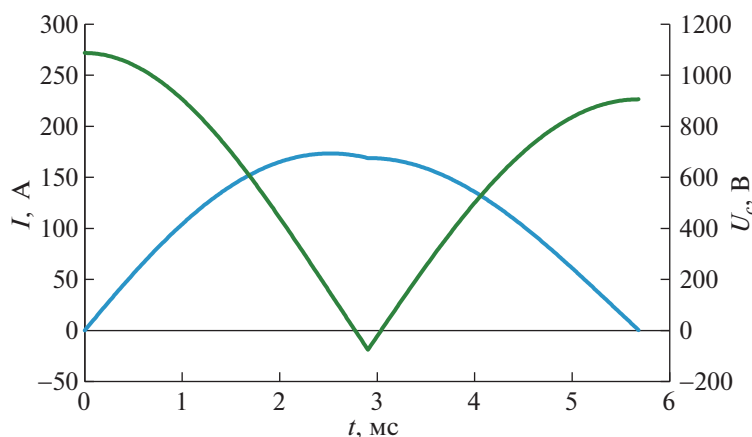


Рис. 4. Временные диаграммы изменения тока в соленоиде и напряжения на конденсаторе для четырехслойной намотки проводом ПЭЛ-2.

Таблица 3. Параметры обмотки и разрядного контура рассмотренных модификаций соленоида

	Для провода, мм					
	Ø2.5			3 × 5		
Количество слоев k	2	3	4	2	3	4
Количество витков N	332	498	664	152	228	304
Индуктивность L , мГн	2.4	5.3	9.4	0.49	1.1	2
Сопротивление соленоида r , мОм	388	609	847	63	100	139
Емкость C , мФ	1.18	0.53	0.3	5.76	2.56	1.41
Волновое сопротивление ρ , Ом	1.43	3.16	5.6	0.3	0.66	1.2
Добротность контура Q	3.68	5.2	6.61	4.6	6.56	8.6
Амплитуда тока в соленоиде I , А	388	259	194	850	566	424
Максимальное напряжение на конденсаторе, В	555	817	1087	248	371	505
Зарядное сопротивление, Ом	208	490	913	45	109	206
Напряжение дозарядки конденсатора, В	243	275	319	128	111	115
Средняя мощность источника, Вт	155	115	100	163	97	79

саторе с переходом в область отрицательных значений. Ключи К4 и К5 замыкаются по окончании пролета пучка легких ионов, направление тока через конденсатор изменяется на обратное, и напряжение на нем восстанавливается в исходной полярности до значения $U_c(\tau_u)$. Параметры рассчитанных моделей соленоида, силового контура, величин импульсных токов и зарядных напряжений приведены в табл. 3.

Таблица 4. Максимальная температура нагрева соленоида

Марка провода	Количество слоев	$P_{ср}$, Вт	Установившаяся температура, °С
ПЭЛ-2	2	155	60
	3	108	48
	4	85	44
ПБД 5 × 3 мм ²	2	119	51
	3	85	41
	4	66	35

РАСЧЕТ ТЕМПЕРАТУРЫ НАГРЕВА СОЛЕНОИДА

Для определения нагрева соленоида вычислялось усредненное значение тока по периоду следования импульсов пучка T_0 и мощность рассеяния:

$$I_{ср.д} = I \sqrt{\frac{\tau_u}{2T_0}}; \quad P_{ср} = r I_{ср.д}^2.$$

Тепловой расчет проведен в пакете моделирования Comsol [9], Теплопроводность между слоями соответствует изолирующему материалу — лавсан, $\alpha = 0.14$ Вт/(м К) толщиной 0.1 мм, коэффициент теплоотдачи на границе обмотки с окружающей средой принят равным 15 Вт/(м² К). Моделирование динамики процесса нагрева проводилось для условий естественного конвективного теплообмена при температуре окружающей среды 20°С. При этом учтено, что со стороны внутренней поверхности соленоида теплообмен с внешней средой отсутствует.

Задача расчета состоит в определении рабочей температуры соленоида. Так в качестве примера на рис. 5 представлен график изменения температуры двухслойного соленоида, выполненного проводом ПЭЛ-2. Анализ показывает, что в этом случае примерно за 3 ч работы в номинальном ре-

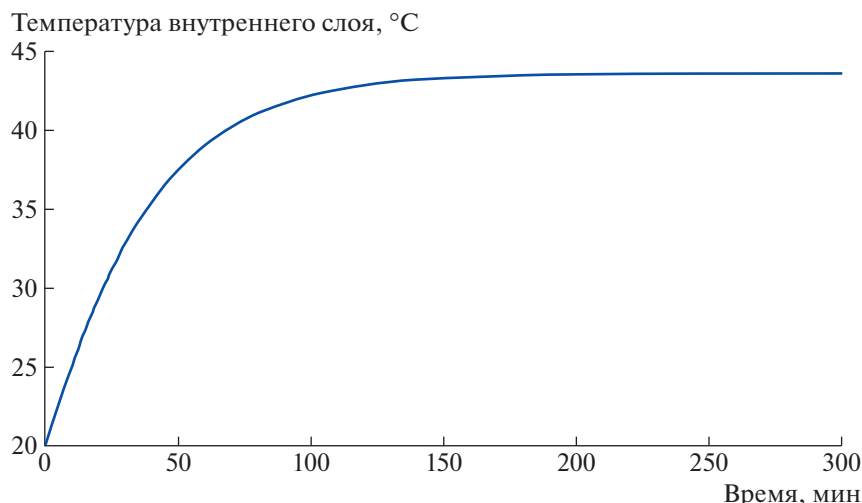


Рис. 5. Зависимость температуры в четырехслойном соленоиде (ПЭЛ-2) от времени.

жиме двухслойный соленоид нагревается до температуры, близкой к установившейся $\approx 44^\circ\text{C}$.

Для остальных моделей соленоида расчет установившейся температуры проводился аналогично. Величины средней мощности и установившихся температур для всех моделей соленоида приведены в табл. 4. По соображениям наименьшей рабочей температуры предпочтителен четырехслойный соленоид, выполненный проводом ПБД: его рабочая температура не выше 34°C . Двухслойные модели соленоида не удовлетворяют допуску T_p на рабочую температуру (табл. 1).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе проведено моделирование соленоида для фокусировки пучка легких ионов и определение схемы генератора импульсного питания для заданных параметров магнитного поля и размеров рабочей области. Для этого рассчитаны необходимое количество ампер-витков и основные параметры обмотки соленоида, выбрана расчетная модель поля для вычисления индуктивности. Определены схема генератора, функционирующего в режиме рекуперации энергии, накопленной в индуктивной нагрузке, параметры колебательного контура и величина необходимой мощности источника питания. Расчеты выполнены для 6 вариантов соленоида: варьировалось количество слоев обмотки в диапазоне 2–4 и тип провода — ПЭЛ-2 и ПБД $5 \times 3 \text{ мм}^2$. Для всех вариантов был проведен расчет температуры соленоида в установившемся режиме работы. На основании проведенных расчетов выбран наиболее эффективный вариант: 4-слойный соленоид с намоткой, выполненной проводом ПБД.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения №075-15-2021-1358 от 12 октября 2021г (ID RF–0951.61321X0015). В работе использовалось оборудование Центра коллективного пользования КАМИКС (<https://ckp-rf.ru/ckp/502001/>) НИЦ “Курчатовский институт”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Fedin P.A., Saratovskik M.S., Kuibeda R.P., Sitnikov A.L., Kulevoy T.V., Nikitin A.A., Rogozhkin S.V. // J. Phys.: Conf. Ser. 2018. V. 1115 (3). P. 032026.
2. Nelson R.S., Mazey D.J., Hudson J.A. // J. Nucl. Mater. 1970. V. 37. P. 1–12.
3. Taller S., Woodley D., Getto E., Monterrosa A.M., Jiao Zh., Toader O., Naab F., Kubley Th., Dwaraknath Sh., Was G.S. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2017. V. 412. P. 1–10.
4. Fedin P.A. et al. // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V. 1686. P. 012073
<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1686/1/012073>
5. Селезнев Д.Н., Зарубин А.Б., Кузьмичев В.Г., Кувейвой Т.В. // ЭЦР-источник легких ионов. Сб. тр. VII Междунар. конф. “Лазерные, плазменные исследования и технологии — ЛаПлаз 2021”. Москва, 2021.
6. Бессонов Л.А. Теоретические основы электротехники. Электромагнитное поле. 1986. Москва: Высшая школа.
7. Савельев И.В. Курс общей физики. Т. 2. Электричество. 1964. Москва: Наука.
8. Micro-Cap. <http://www.spectrum-soft.com/index.shtm>.
9. Comsol. <https://www.comsol.ru/>.

Designing a Solenoid for a Light Ion Beam Focusing

I. V. Kilmetova^{1, 2, *}, A. V. Kozlov¹, T. V. Kulevoy^{1, 2}, Yu. B. Stasevich¹, A. V. Ziatdnova¹,
P. A. Fedin¹, and K. E. Pyianishnikov¹

¹ National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

² National Research University Higher School of Economics, Moscow, 101000 Russia

*e-mail: irina.kilmetova@yandex.ru

Received June 28, 2022; revised June 28, 2022; accepted June 30, 2022

Abstract—Ion accelerator is multi-tool used for effects of neutron irradiation of reactor materials simulating. The heavy ion accelerator HIPr (Heavy Ion Prototype) is used for radiation damage in steels and alloys simulating at ITEP (National Research Centre “Kurchatov institute”). In the main irradiations is carried out with iron ions Fe^{2+} but, if necessary, vanadium, tantalum, carbon and many others ions beams can be used. It is necessary to implant hydrogen and helium into the area of damage for effect of nuclear reaction products on reactor structural materials simulating. The second channel is created for simultaneous irradiation with heavy and light ions for improving experiments. The paper considers the design of a solenoid which is used to focus a helium ion beam from ECR source and the method of its power supply.

Keywords: solenoid, focusing, irradiation experiment, ion beam, ion accelerator

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 539.1.074.3

ОТКРЫТИЕ СУБПУАССОНОВСКОЙ СТАТИСТИКИ СВЕТОВЫХ ФОТОНОВ В СЦИНТИЛЛЯТОРАХ, КОТОРОЕ НЕ СОСТОЯЛОСЬ

© 2022 г. В. В. Самедов*

Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия

*E-mail: v-samedov@yandex.ru

Поступила в редакцию 20.08.2021 г.

После доработки 20.08.2021 г.

Принята к публикации 20.08.2021 г.

В работе “Антикорреляции фотоэлектронов и субпуассоновская статистика в сцинтилляционных детекторах”, А. Бусселхэм с соавторами, при рассмотрении регистрации рентгеновского излучения сцинтилляционным детектором, ввели два фактора Фано — фактор Фано для сцинтилляционных фотонов и фактор Фано для фотоэлектронов. Они заявили, что их экспериментальные данные дают прямые доказательства субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах. Точное математическое описание процессов при регистрации рентгеновских лучей сцинтилляционным детектором позволяет получить правильные формулы для среднего значения, дисперсии амплитуды на выходе фотодетекторов и формулы для ковариации между сигналами фотодетекторов. Из анализа этих формул следует, что сцинтилляционный детектор должен характеризоваться только одним фактором Фано, определяющим флуктуации процесса образования электронно-дырочных пар в сцинтилляторе. Так как фактор Фано для электронно-дырочных пар в сцинтилляторах имеет значение порядка 0.1, то это объясняет полученные в статье результаты. Таким образом, открытие субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах не состоялось.

Ключевые слова: сцинтилляционный детектор, фотодетектор, энергетическое разрешение, светосбор, фактор Фано, ковариации сигналов, статистика фотоотсчетов, субпуассоновская статистика

DOI: 10.56304/S2079562922010365

1. ВВЕДЕНИЕ

В своей статье “Антикорреляции фотоэлектронов и субпуассоновская статистика в сцинтилляционных детекторах” [1], авторы утверждали, что они предложили новый экспериментальный подход к изучению статистики сцинтилляционных фотонов и статистики фотоэлектронов путем наблюдения корреляции между сигналами двух фотодетекторов. Они заявили, что их экспериментальные данные дают прямые доказательства субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах.

В своей математической модели авторы считали, что зарегистрированный детектором рентгеновский квант с энергией E образует в сцинтилляционном кристалле случайное число световых фотонов N , которые, в свою очередь, производят случайное число фотоэлектронов n в фотодетекторе. Авторы ввели два фактора Фано — фактор Фано для сцинтилляционных фотонов

$$F_N = \sigma_N^2 / \langle N \rangle, \quad (1)$$

и фактор Фано для фотоэлектронов

$$F_n = \sigma_n^2 / \langle n \rangle, \quad (2)$$

где $\langle N \rangle$ и σ_N^2 — среднее число и дисперсия числа сцинтилляционных фотонов, генерируемых рентгеновским квантом; $\langle n \rangle$ и σ_n^2 — среднее число и дисперсия числа фотоэлектронов, образуемых сцинтилляционными фотонами в фотодетекторе. В своей работе авторы приводят соотношение между средним числом фотоэлектронов и сцинтилляционных фотонов

$$\langle n \rangle = \langle N \rangle \eta, \quad (3)$$

где η — вероятность превращения фотона в фотоэлектрон в фотодетекторе; соотношение между факторами Фано

$$F_n = 1 + \eta(F_N - 1); \quad (4)$$

и матрицу ковариации для числа фотоэлектронов на фотокатодах двух фотоумножителей

$$K_{ij}^{(n)} = \langle N \rangle \begin{bmatrix} \eta_1 + \eta_1^2(F_N - 1) & \eta_1\eta_2(F_N - 1) \\ \eta_1\eta_2(F_N - 1) & \eta_2 + \eta_2^2(F_N - 1) \end{bmatrix}. \quad (5)$$

С учетом среднего значения $\langle G_j \rangle$ и относительной дисперсии $\alpha_j = \text{var}(G_j) / \langle G_j \rangle^2$ коэффициента умножения фотоумножителя, и связи сигналов фотоумножителей со средним числом световых фотонов $\langle s_j \rangle = \eta_j \langle G_j \rangle \langle N \rangle$, авторы приводят формулы для элементов матрицы ковариации для сигналов двух фотоумножителей

$$K_{ij}^{(s)} = \frac{\langle s_j \rangle^2}{\eta_j \langle N \rangle} [1 + \alpha + \eta(F_N - 1)], \quad (6)$$

$$K_{ij}^{(s)} = \frac{\langle s_i \rangle \langle s_j \rangle}{\langle N \rangle} (F_N - 1). \quad (7)$$

В результате они приводят выражение для коэффициента корреляции сигналов фотоумножителей для симметричного случая, когда $\eta_1 = \eta_2 = \eta$

$$r_{12} = \frac{K_{12}^{(s)}}{\sqrt{K_{11}^{(s)} K_{22}^{(s)}}} = \frac{\eta(F_N - 1)}{1 + \alpha + \eta(F_N - 1)}, \quad (8)$$

и связь фактора Фано для световых фотонов с коэффициентом корреляции сигналов фотоумножителей

$$\hat{F}_N = 1 + \frac{\hat{r}_{12}}{1 - \hat{r}_{12}} \frac{1 + \alpha}{\eta}, \quad (9)$$

где знак каре над символом означает статистическую оценку соответствующей величины.

Из своих экспериментальных данных, в работе [1], авторы получили для фактора Фано для световых фотонов в сцинтилляторе LaBr₃:Ce значение $F_N = 0.10 \pm 0.16$ с фотоумножителями Hamamatsu R6233-100 и значение $F_N = 0.09 \pm 0.20$ с фотоумножителями Hamamatsu R7600U-200. Полученные результаты для фактора Фано для световых фотонов авторы подтвердили в своей следующей статье [2]. Это дало им основание объявить об открытии субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах. Не останавливаясь на погрешностях их экспериментальных данных, на которые я обратил их внимание в работе [3], я объяснил ошибочное введение фактора Фано для световых фотонов в работе [4].

Являются ли экспериментальные результаты [1, 2] доказательством открытия субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах? Ни в коем случае! Это ошибочное утверждение связано с тем, что их модель не включает промежуточные этапы, которые происходят в сцинтилляторе при регистрации рентгеновских лучей, т. е. преобразование энергии рентгеновского кванта в энергию вторичных заряженных частиц, генерацию электронно-дырочных пар, возбуждение люминесцентных центров, излучение световых фотонов и сбор световых фотонов на фотокатодах фотодетекторов. Результаты работ [1, 2] яв-

ляются несомненным доказательством неприменимости описания статистики фотонов фактором Фано для световых фотонов в сцинтилляторе. Причина этого несоответствия заключается в принципиальном различии регистрации световых фотонов в квантовой оптике и регистрации рентгеновских лучей сцинтилляционным детектором в радиационной физике.

2. СВЯЗЬ МЕЖДУ СТАТИСТИКАМИ ФОТОНОВ И ФОТОЭЛЕКТРОНОВ В КВАНТОВОЙ ОПТИКЕ

Действительно, в квантовой оптике статистика фотонов характеризуется параметром Манделя [5]

$$Q = (\langle (\Delta N)^2 \rangle - \langle N \rangle) / \langle N \rangle, \quad (10)$$

где $\langle N \rangle$ и $\langle (\Delta N)^2 \rangle$ – среднее значение и дисперсия числа фотонов в световом импульсе. Относительная дисперсия числа фотонов в световом импульсе определяется выражением

$$\eta_N^2 = \sigma_N^2 / \langle N \rangle^2 = (Q + 1) / \langle N \rangle = F_N / \langle N \rangle, \quad (11)$$

где $F_N = Q + 1$ – фактор Фано, также используемый параметр для характеристики статистики световых фотонов в квантовой оптике.

В квантовой оптике существуют три возможных статистики фотонов в световом импульсе. Если $Q = 0$, то есть $F_N = 1$, то статистика фотонов пуассоновская. Источник света со стабильной интенсивностью подчиняется статистике Пуассона, например, идеально когерентный лазерный свет. Если $Q > 0$, то есть $F_N > 1$, статистика фотонов суперпуассоновская. Любой классический источник света, или более точно, любой источник с хаотически изменяющейся интенсивностью света подчиняется суперпуассоновской статистике. Если $Q < 0$, то есть $0 < F_N < 1$, статистика фотонов субпуассоновская, то есть источник света является неклассическим, например, так называемый квантовый источник сжатого света. Следует отметить, что создание неклассических источников света требует большой изобретательности и находится в стадии разработки во многих лабораториях мира.

В квантовой теории фотодетектирования световых полей [6] существует аналог формулы (4). Чтобы получить формулу для связи статистики фотонов и фотоэлектронов в квантовой оптике, необходимо иметь модели для описания, как светового поля, так и фотодетектора. Статистические свойства источника света должны быть стационарными, то есть статистические средние измеряемых величин должны быть инвариантны во времени. Процесс фотодетектирования в квантовой оптике представляет собой случайный стоха-

стический процесс регистрации фотодетектором случайного числа фотоотсчетов n из случайного числа световых фотонов N , попадающих на фотодетектор в течение одного и того же времени измерения T . Этот случайный процесс является эргодическим, поскольку характер флуктуаций числа фотоотсчетов и флуктуаций числа световых фотонов неизменны в каждой реализации процесса.

Процесс регистрации пучка фотонов фотодетектором с эффективностью регистрации η можно рассматривать как светоделитель с четырьмя портами — двумя входными: портом вакуумного поля 0 и портом регистрируемого фотона 1, и двумя выходными: свободным портом 2 и портом детектора фотонов 3. В квантовой теории идеального светоделителя все четыре порта могут быть представлены операторами рождения и уничтожения с коммутационными соотношениями [7]

$$[\hat{a}_i, \hat{a}_j^+] = \delta_{ij}. \quad (12)$$

Сохранение числа фотонов между входными и выходными портами идеального светоделителя должно связывать операторы уничтожения выходных портов с операторами уничтожения входных портов унитарным преобразованием

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_2 \\ \hat{a}_3 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} t' & r' \\ r' & t \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a}_0 \\ \hat{a}_1 \end{pmatrix}, \quad (13)$$

с комплексными коэффициентами отражения r' и прохождения t' для порта вакуумного поля и коэффициентами отражения r и прохождения t для порта регистрируемого фотона. Из унитарности матрицы преобразования следуют условия

$$|r|^2 + |t|^2 = 1, \quad (14)$$

$$|r'|^2 + |t'|^2 = 1, \quad (15)$$

$$r'^* t + t'^* r = 0, \quad (16)$$

$$t^* r' + r^* t' = 0. \quad (17)$$

Если мы введем амплитуды и фазы комплексных коэффициентов $r = |r| \exp(i\theta_r)$, $r' = |r'| \exp(i\theta_{r'})$, $t = |t| \exp(i\theta_t)$, $t' = |t'| \exp(i\theta_{t'})$, и связь между амплитудами $|r'| = C|r|$, $|t'| = C|t|$, то, из условий (14)–(17), следуют соотношения

$$|r| = \sqrt{1 - |t|^2}, \quad (18)$$

$$C = 1, \quad (19)$$

$$\exp(i(\theta_r + \theta_{r'} - \theta_t - \theta_{t'})) = -1 = \exp(i\pi). \quad (20)$$

Для выбора фаз комплексных коэффициентов прохождения и отражения

$$\theta_t = 0, \quad \theta_r = 0, \quad \theta_{t'} = 0, \quad \theta_{r'} = \pi, \quad (21)$$

удовлетворяющих соотношению (20), связь между операторами уничтожения будет иметь вид

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_2 \\ \hat{a}_3 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} t & \sqrt{1 - |t|^2} \\ -\sqrt{1 - |t|^2} & t \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a}_0 \\ \hat{a}_1 \end{pmatrix}. \quad (22)$$

Вводя обозначение для входного состояния $|N, 0\rangle = |N\rangle_1 \otimes |0\rangle_0$, и, используя коммутационные соотношения (12), получим выражение для эффективности регистрации, т. е. вероятности регистрации одного фотона фотодетектором

$$\begin{aligned} \eta &= \langle 1; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 | 1; 0 \rangle = \langle 1; 0 | \left(\sqrt{1 - t^2} \hat{a}_0^+ + t \hat{a}_1^+ \right) \times \\ &\quad \times \left(-\sqrt{1 - t^2} \hat{a}_0 + t \hat{a}_1 \right) | 1; 0 \rangle = \\ &= -(1 - t^2) \langle 1; 0 | \hat{a}_0^+ \hat{a}_0 | 1; 0 \rangle + t^2 \langle 1; 0 | \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 | 1; 0 \rangle = t^2. \end{aligned} \quad (23)$$

Связь между операторами уничтожения, выраженная через эффективность регистрации, будет иметь вид

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_2 \\ \hat{a}_3 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} \sqrt{\eta} & \sqrt{1 - \eta} \\ -\sqrt{1 - \eta} & \sqrt{\eta} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a}_0 \\ \hat{a}_1 \end{pmatrix}. \quad (24)$$

Если статистика зарегистрированных фотонов за время измерения T определяется распределением вероятностей $P(N)$, то выражения для ее первых двух моментов будут иметь вид

$$\begin{aligned} \langle n \rangle &= \sum_N P(N) \langle N; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 | N; 0 \rangle = \\ &= \sum_N P(N) \langle N; 0 | \left(\sqrt{1 - \eta} \hat{a}_0^+ + \sqrt{\eta} \hat{a}_1^+ \right) \times \\ &\quad \times \left(-\sqrt{1 - \eta} \hat{a}_0 + \sqrt{\eta} \hat{a}_1 \right) | N; 0 \rangle = \\ &= \sum_N P(N) [-(1 - \eta) \langle N; 0 | \hat{a}_0^+ \hat{a}_0 | N; 0 \rangle + \\ &+ \eta \langle N; 0 | \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 | N; 0 \rangle] = \eta \sum_N P(N) N = \eta \langle N \rangle, \end{aligned} \quad (25)$$

$$\begin{aligned} \langle n^2 \rangle &= \sum_N P(N) \langle N; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 | N; 0 \rangle = \\ &= \sum_N P(N) (\langle N; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 \hat{a}_3 | N; 0 \rangle + \\ &\quad + \langle N; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 | N; 0 \rangle) = \\ &= \sum_N P(N) \langle N; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 \hat{a}_3 | N; 0 \rangle + \eta \langle N \rangle. \end{aligned} \quad (26)$$

Из-за коммутационных соотношений все члены, включающие операторы рождения и уничтожения для порта вакуумного поля, исчезают, и первая сумма равна в выражении (26) равна

$$\begin{aligned}
& \sum_N P(N) \langle N; 0 | \hat{a}_3^+ \hat{a}_3^+ \hat{a}_3 \hat{a}_3 | N; 0 \rangle = \\
& = \sum_N P(N) \langle N; 0 | (\sqrt{1-\eta} \hat{a}_0^+ + \sqrt{\eta} \hat{a}_1^+) \times \\
& \times (\sqrt{1-\eta} \hat{a}_0^+ + \sqrt{\eta} \hat{a}_1^+) (-\sqrt{1-\eta} \hat{a}_0 + \sqrt{\eta} \hat{a}_1) \times \\
& \times (-\sqrt{1-\eta} \hat{a}_0 + \sqrt{\eta} \hat{a}_1) | N, 0 \rangle \quad (27) \\
& = \eta^2 \sum_N P(N) \langle N; 0 | \hat{a}_1^+ \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 \hat{a}_1 | N, 0 \rangle = \\
& = \eta^2 \sum_N P(N) (\langle N; 0 | \hat{a}_1^+ \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 \hat{a}_1 | N, 0 \rangle - \langle N; 0 | \hat{a}_1^+ \hat{a}_1 | N, 0 \rangle) \\
& = \eta^2 \sum_N P(N) (N^2 - N) = \eta^2 (\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle).
\end{aligned}$$

Таким образом, дисперсия числа зарегистрированных детектором фотоэлектронов принимает вид

$$\begin{aligned}
\sigma_n^2 &= \langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2 = \eta^2 (\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle) + \\
&+ \eta \langle N \rangle - \eta^2 \langle N \rangle^2 = \sigma_N^2 \eta^2 + \langle N \rangle \eta (1 - \eta). \quad (28)
\end{aligned}$$

С определениями факторов Фано (1) и (2), выражение (28) можно привести к формуле

$$F_n = 1 + \eta(F_N - 1), \quad (29)$$

которая аналогична формуле (4). Однако, если формула (29) справедлива для связи между статистикой фотоэлектронов и фотонов в квантовой оптике, то формула (4) вообще неприменима к сцинтилляционным детекторам в радиационной физике.

Причина этого несоответствия заключается в принципиальном различии регистрации световых фотонов в квантовой оптике и регистрации рентгеновских лучей сцинтилляционным детектором в радиационной физике. Отсутствие микроскопического подхода, который позволяет учесть все этапы, происходящие при преобразовании энергии регистрируемой частицы в сигнал на выходе сцинтилляционного спектрометра, привело к тому, что рассмотрение процесса регистрации частицы в работе [1] начинается с процесса образования световых фотонов рентгеновским квантом. Именно отсутствие промежуточных этапов, а именно, преобразования энергии рентгеновского кванта в энергию вторичных заряженных частиц, образование электронно-дырочных пар, возбуждение люминесцентных центров, излучение световых фотонов и сбор световых фотонов на фотокатодах фотодетекторов, привело к ошибочному утверждению об открытии субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах.

Только микроскопический подход в теории ветвящихся каскадных случайных процессов может дать правильное выражение для связи флуктуаций выходных сигналов фотодетекторов с флуктуациями процессов, происходящих при регистрации частицы сцинтилляционным детектором.

3. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО ДЕТЕКТОРА ПРИ РЕГИСТРАЦИИ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ

В работе [8], на основании микроскопической теории случайных ветвящихся каскадных процессов были получены формулы для энергетического разрешения сцинтилляционного спектрометра с несколькими фотодетекторами. Математическая модель учитывает, что процесс превращения энергии регистрируемой частицы в выходной сигнал спектрометра включает следующие последовательные этапы.

1. Этап взаимодействия регистрируемой частицы со сцинтилляционным кристаллом.
2. Этап генерации электронно-дырочных пар.
3. Этап рекомбинации электронно-дырочных пар.
4. Этап диффузии носителей (электронов, дырок и экситонов) в сцинтилляторе.
5. Этап активации люминесцентных центров.
6. Этап эмиссии светового фотона люминесцентным центром.
7. Этап светосбора светового фотона на фотокатод фотодетектора.
8. Этап преобразования светового фотона в фотоэлектрон в фотокатоде фотодетектора.
9. Этап усиления сигнала фотодетектором с учетом шумов электроники.

Микроскопический подход заключается в детальном описании случайных процессов преобразования энергии первичной частицы в детекторе, позволяющий получать моменты функции распределения амплитуды выходного сигнала через моменты функций распределения этапов, в частности, через совместные функции распределения вторичных частиц в элементах фазового пространства $d\Gamma = dV dE d\Omega$.

Чтобы понять, к чему приводит отсутствие этапов в работе [1], учитываемых в микроскопической теории, приведем основные формулы теории сцинтилляционных детекторов. В соответствии с теми условиями, которые приняты в работе [1], будем считать, что при регистрации моноэнергетического рентгеновского излучения низкой энергии E_0 , вся энергия первичной частицы поглощается локально в точке $\mathbf{r}_c$, и вторичными частицами являются электроны. Будем также считать, что в однородном и изотропном сцинтилляционном кристалле люминесцентные центры осуществляют один излучающий переход. В данном приближении формулы микроскопической теории для среднего значения и дисперсии сигнала каждого из фотоумножителей принимают вид

$$\langle Q_n(E_0) \rangle = \langle Y^c(E_0) \rangle_c \langle T_n(\mathbf{r}_c) \rangle_c \langle g_n \rangle, \quad (30) \quad \eta_Q^2(E_0) = \eta_{\text{cov}}^2 + \eta_{\text{pair}}^2 + \eta_{\text{tr}}^2 + \eta_{\text{gain}}^2 + \eta_{\text{noise}}^2, \quad (31)$$

где

$$\eta_{\text{cov}}^2 = \frac{\int \int_{E, E'} dE dE' u(E - E_{\min}) u(E' - E_{\min}) \left\langle \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} \frac{\partial Y^c(E_0, E')}{\partial E'} \right\rangle_c \langle T^2(\mathbf{r}_c) \rangle_c}{\langle Y^c(E_0) \rangle_c^2 \langle T(\mathbf{r}_c) \rangle_c^2} - 1 \quad (32)$$

— относительная дисперсия выходного сигнала спектрометра, обусловленная ковариациями вторичных частиц в фазовом пространстве;

$$\eta_{\text{pair}}^2 = \frac{\int_E dEu(E - E_{\min}) \left\langle F(E) \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} S(E) Q \right\rangle_c \langle T^2(\mathbf{r}_c) \rangle_c}{\langle Y^c(E_0) \rangle_c^2 \langle T(\mathbf{r}_c) \rangle_c^2} \quad (33)$$

— относительная дисперсия выходного сигнала спектрометра, обусловленная флуктуациями числа электронно-дырочных пар;

$$\eta_{\text{tr}}^2 = \frac{1}{\langle Y^c(E_0) \rangle_c \langle T(\mathbf{r}_c) \rangle_c} - \frac{\int_E dEu(E - E_{\min}) \left\langle \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} S(E) Q \right\rangle_c \langle T^2(\mathbf{r}_c) \rangle_c}{\langle Y^c(E_0) \rangle_c^2 \langle T(\mathbf{r}_c) \rangle_c^2} \quad (34)$$

— относительная дисперсия выходного сигнала спектрометра, обусловленная флуктуациями процессов, происходящих в детекторе от образования электронно-дырочной пары в сцинтилляторе до образования фотоэлектрона в фотодетекторе;

$$\eta_{\text{gain}}^2 = \frac{1}{\langle Y^c(E_0) \rangle_c \langle T(\mathbf{r}_c) \rangle_c \langle g \rangle^2} \sigma_g^2 \quad (35)$$

— относительная дисперсия выходного сигнала спектрометра, обусловленная флуктуациями коэффициента усиления фотодетектора и электронного усилителя;

$$\eta_{\text{noise}}^2 = \frac{\sigma_{\text{noise}}^2}{\langle Q(E_0) \rangle^2} \quad (36)$$

— относительная дисперсия выходного сигнала спектрометра, обусловленная шумами фотодетектора и электроники.

Во всех приведенных выше формулах,

$$\frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} = \frac{w^c(E_0, E)}{\epsilon_{e-h}(E)} S(E) Q \quad (37)$$

— дифференциальный световыход сцинтиллятора для энергии электрона E , образованного рентгеновским квантом с энергией E_0 , в процессе потери им энергии в сцинтилляторе; $w^c(E_0, E)$ — дифференциальная плотность поглощённой энергии для определенной конфигурации c распределения поглощенной энергии в элементах фазового пространства $d\Gamma = dV dE d\Omega$; $\epsilon_{e-h}(E)$ — средняя энергия образования электронно-дырочной пары электроном с энергией E ; $S(E)$ — вероятность активации люминесцентного центра, зависящая от тормозной способности электрона с энергией E ; Q — квантовая эффективность процесса люминесценции;

$$Y^c(E_0) = \int_E dEu(E - E_{\min}) \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} = E_0 L \quad (38)$$

— световыход сцинтиллятора для рентгеновских квантов с энергией E_0 ; L — удельный световыход; $\langle g \rangle$ и σ_g^2 среднее значение и дисперсия коэффициента усиления фотодетектора. Индекс c при угловых скобках обозначает усреднение по всевозможным распределениям поглощенной энергии в элементах фазового пространства. В формулах учтена коммутативность операций интегрирования и усреднения, и мультипликативность усреднения произведения независимых величин.

В приведенных выше формулах

$$T(\mathbf{r}) = (1 + \lambda_D^2 \Delta) \times \int_{\Omega'} \frac{d\Omega'}{4\pi} \int_{S, \Omega''} dS d\Omega'' \tau(\mathbf{r}, \lambda, \Omega', S, \Omega'') \eta(\lambda, S, \Omega'') \quad (39)$$

— вероятность сцинтилляционному фотону, испущенному люминесцентным центром в точке $\mathbf{r}$ объема сцинтиллятора, образовать фотоэлектрон в фотодетекторе; $\tau(\mathbf{r}, \lambda, \Omega', S, \Omega)$ — вероятность фотону с длиной волны λ , испущенному в направлении, принадлежащем элементу телесного угла $d\Omega'$, люминесцентным центром, находящимся в точке $\mathbf{r}$ объема сцинтиллятора, достичь элемента поверхности dS входного окна фотодетектора в направлении, принадлежащем элементу телесного угла $d\Omega''$ относительно нормали к элементу поверхности фотокатода; $\eta(\lambda, S, \Omega)$ — квантовая эффективность элемента поверхности dS фотодетектора к световому фотону с длиной волны λ , пересекающему входное окно в направлении, принадлежащем элементу телесного угла $d\Omega''$; λ_D — характерная длина диффузии носителей; Δ — оператор Лапласа.

В отличие от существующих в литературе формул, формулы микроскопической теории содержат информацию о зависимостях всех вкладов в энергетическое разрешение от характеристик сцинтиллятора, интерфейса сцинтиллятор-фотодетектор, характеристиками фотодетектора и электронного тракта спектрометра. Формулы отражают каскадный характер случайных процессов преобразования энергии первичной частицы в выходной сигнал детектора, поскольку каждый последующий вклад в разрешение по энергии уменьшается в фактор, равный произведению средних значений предыдущих этапов.

Следует подчеркнуть, что формула для относительной дисперсии выходного сигнала сцинтилляционного детектора не содержит фактора Фано для световых фотонов. Из-за случайного пространственного распределения люминесцентных центров в сцинтилляционном кристалле энергетические уровни каждого люминесцентного центра испытывают различные штарковские сдвиги,

обусловленные результирующим электрическим полем окружающих ионов. Поэтому число световых фотонов в каждой элементарной излучательной моде много меньше единицы, и мы можем считать, что световые фотоны испускаются люминесцентными центрами независимо. Поскольку процесс излучения светового фотона люминесцентным центром описывается биномиальным распределением, его флуктуации учитываются в формуле (34). Относительная дисперсия выходного сигнала сцинтилляционного детектора содержит только фактор Фано, который определяет флуктуации числа электронно-дырочных пар (33).

Для сравнения с формулой (29), определяющей дисперсию числа зарегистрированных фотоэлектронов идеальным детектором в экспериментах в квантовой оптике, необходимо осуществить в формулах микроскопической теории сцинтилляционных детекторов приближение к случаю идеального сцинтилляционного детектора. В идеальном сцинтилляционном детекторе коэффициент усиления $\langle g \rangle = 1$ и флуктуации усиления и электронный шум отсутствуют, т. е. $\sigma_g^2 = 0$ и $\sigma_{\text{noise}}^2 = 0$; каждая электронно-дырочная пара генерирует сцинтилляционный фотон, т. е. $S(E)Q = 1$. Если сцинтилляционный кристалл абсолютно прозрачен и квантовый выход фотокатода равен η , то вероятность регистрации светового фотона фотодетектором равна $T(\mathbf{r}) = \eta$. Если средняя энергия образования электронно-дырочной пары и фактор Фано не зависят от энергии электронов, то относительная дисперсия выходного сигнала фотодетектора имеет вид

$$\eta_{\text{ideal}}^2 = \eta_{\text{cov}}^2 + \eta_{\text{pair}}^2 + \eta_{\text{tr}}^2. \quad (40)$$

В формуле (40)

$$\eta_{\text{cov}}^2 = \eta_Y^2 = \frac{\int \int_E dE dE' u(E - E_{\min}) u(E' - E_{\min}) \left\langle \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} \frac{\partial Y^c(E_0, E')}{\partial E'} \right\rangle_c}{\langle Y^c(E_0) \rangle_c^2} - 1 \quad (41)$$

— относительная дисперсия выходного сигнала детектора, обусловленная ковариациями дифференциального световыхода сцинтиллятора. Именно это слагаемое связано с непропорциональностью световыхода, т. е. с зависимостью дифференциального световыхода от энергии электрона в процессе потерь им энергии в сцинтилляторе.

Если дифференциальный световыход сцинтиллятора не зависит от энергии электрона, то, в соответствии с формулой (37), формула (41) будет соответствовать относительной дисперсии выходного сигнала детектора, обусловленной ковариациями поглощенной энергии в сцинтилляторе

$$\eta_Y^2 = \eta_W^2 = \frac{\left\langle \int_E \int_{E'} dE dE' u(E - E_{\min}) u(E' - E_{\min}) w^c(E_0, E) w^c(E_0, E') \right\rangle_c}{\left\langle W^c(E_0, E_{\min}) \right\rangle_c^2} - 1. \quad (42)$$

Второе слагаемое в формуле (40) представляет относительную дисперсию выходного сигнала детектора, обусловленную флуктуациями числа электронно-дырочных пар

$$\eta_{\text{pair}}^2 = \frac{F}{\left\langle Y^c(E_0) \right\rangle_c} = \frac{F \varepsilon_{e-h}}{\left\langle W^c(E_0, E_{\min}) \right\rangle_c}, \quad (43)$$

где

$$\left\langle W^c(E_0, E_{\min}) \right\rangle_c = \left\langle \int_E dE u(E - E_{\min}) w^c(E_0, E) \right\rangle_c \approx E_0 \quad (44)$$

— средняя энергия, поглощенная сцинтиллятором при регистрации рентгеновского излучения, которая идет на образование электронно-дырочных пар, которая практически равна энергии регистрируемой частицы. Так как средняя энергия образования электронно-дырочной пары определяется как отношение энергии рентгеновского кванта E_0 к среднему числу образованных электронно-дырочных пар $\langle N_{e-h} \rangle$, то формулу (43) можно представить в виде

$$\eta_{\text{pair}}^2 = \frac{F \varepsilon_{e-h}}{E_0} = \frac{F}{\langle N_{e-h} \rangle}. \quad (45)$$

В приближении идеального сцинтилляционного детектора относительная дисперсия выходного сигнала фотодетектора, обусловленная флуктуациями комбинированного процесса преобразования электронно-дырочной пары в фотоеlectron в фотодетекторе (34), приводится к выражению.

$$\eta_{\text{tr}}^2 = \frac{\eta(1-\eta)}{\left\langle Y^c(E_0) \right\rangle_c \eta^2} = \frac{\varepsilon_{e-h}(1-\eta)}{E_0 \eta} = \frac{(1-\eta)}{\langle N_{e-h} \rangle \eta}. \quad (46)$$

В результате, относительная дисперсия выходного сигнала фотодетектора принимает вид

$$\eta_{\text{ideal}}^2 = \eta_Y^2 + \frac{F}{\langle N_{e-h} \rangle} + \frac{(1-\eta)}{\langle N_{e-h} \rangle \eta}. \quad (47)$$

Если формально ввести фактор Фано для фотоеlectrons, то выражение (47) можно привести к виду

$$F_n = \frac{\sigma_n^2}{\langle n \rangle} = \eta_{\text{ideal}}^2 \langle n \rangle = \eta_Y^2 \langle n \rangle + \frac{F}{\langle N_{e-h} \rangle} \langle n \rangle + \frac{(1-\eta)}{\langle N_{e-h} \rangle \eta} \langle n \rangle = \eta_Y^2 \langle n \rangle + 1 + \eta(F-1), \quad (48)$$

где

$$\langle n \rangle = \langle N_{e-h} \rangle \eta \quad (49)$$

— среднее число фотоelectrons, регистрируемых фотодетектором.

Только в случае, когда можно пренебречь первым слагаемым, связанным с непропорциональностью световых сцинтиллятора, формула (48) формально совпадает с формулой (29)

$$F_n = 1 + \eta(F-1), \quad (50)$$

в которой вместо фактора Фано для световых фотонов присутствует фактор Фано для электронно-дырочных пар.

4. КОВАРИАЦИИ МЕЖДУ СИГНАЛАМИ ФОТОДЕТЕКТОРОВ

В работе [9] получены общие выражения микроскопической теории для ковариации между сигналами фотодетекторов сцинтилляционного спектрометра с несколькими фотодетекторами. Ковариация между сигналами фотодетекторов $Q_n(E_0)$ и $Q_{n'}(E_0)$, сцинтилляционного спектрометра с однородным и изотропным сцинтиллятором, люминесцентные центры которого осуществляют один излучающий переход, для случая локального поглощения энергии низкоэнергетического рентгеновского излучения с энергией E_0 , определяется выражением

$$\begin{aligned} \text{cov}(Q_n, Q_{n'}) &= \int_E \int_{E'} dE dE' u(E - E_{\min}) u(E' - E_{\min}) \times \\ &\times \left\langle \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} \frac{\partial Y^c(E_0, E')}{\partial E'} \right\rangle_c \langle T_n(\mathbf{r}_c) T_{n'}(\mathbf{r}_c) \rangle_c \langle g_n \rangle \langle g_{n'} \rangle - \\ &- \left\langle Y^c(E_0) \right\rangle_c^2 \langle T_n(\mathbf{r}_c) \rangle_c \langle T_{n'}(\mathbf{r}_c) \rangle_c \langle g_n \rangle \langle g_{n'} \rangle + \\ &+ \int_E dE u(E - E_{\min}) \left\langle \frac{\partial Y^c(E_0, E)}{\partial E} (F(E) - 1) S(E) Q \right\rangle_c \times \\ &\times \langle T_n(\mathbf{r}_c) T_{n'}(\mathbf{r}_c) \rangle_c \langle g_n \rangle \langle g_{n'} \rangle. \end{aligned} \quad (51)$$

В приближении идеального сцинтилляционного детектора, в формуле (51) необходимо учесть, что коэффициенты усиления $\langle g_1 \rangle = 1$ и $\langle g_2 \rangle = 1$; что каждая электронно-дырочная пара генерирует

сцинтилляционный фотон, т. е. $S(E)Q = 1$; что сцинтилляционный кристалл абсолютно прозрачен и вероятность регистрации светового фотона фотодетектором равна квантовому выходу фотокатода $T(\mathbf{r}) = \eta$. Если средняя энергия образования электронно-дырочной пары и фактор Фано не зависят от энергии электронов, то ковариация между сигналами фотодетекторов принимает вид

$$\text{cov}(Q_1, Q_2) = \eta_Y^2 \langle N_{e-h} \rangle^2 \eta_1 \eta_2 + \langle N_{e-h} \rangle (F - 1) \eta_1 \eta_2. \quad (52)$$

Только в случае, когда мы можем пренебречь первым слагаемым, обусловленным непропорциональностью световых выходов сцинтиллятора, формула (52) формально совпадает с недиагональными элементами ковариационной матрицы (5), в которой вместо среднего числа и фактора Фано для световых фотонов присутствуют среднее число и фактор Фано для электронно-дырочных пар.

Таким образом, неправильный подход в работах [1, 2] к описанию процессов, происходящих в сцинтилляционном спектрометре при регистрации частиц, привел к тому, что вместо правильных формул (50) и (52), в которых присутствует фактор Фано для электронно-дырочных пар, в формулах (4) и (5) присутствует, введенный авторами, фактор Фано для световых фотонов. Ошибочное утверждение об открытии субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляционных детекторах связано с тем, что полученные авторами экспериментальные значения относятся не к фактору Фано для световых фотонов, а к фактору Фано для электронно-дырочных пар. Поскольку в полупроводниках фактор Фано для электронно-дырочных пар имеет значение порядка 0.1, то экспериментальные результаты, полученные в работах [1, 2], не противоречат существующим экспериментальным значениям [10]. Таким образом, открытие субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляторах не состоялось.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Точное математическое описание процессов, происходящих в сцинтилляционном спектрометре с несколькими фотодетекторами при регистрации низкоэнергетичного рентгеновского излучения, позволяет получить правильные формулы для среднего значения и дисперсии амплитуды фотодетекторов, а также выражение для ковариации между сигналами фотодетекторов. Из этих формул следует, что сцинтилляционный детектор должен характеризоваться только одним фактором Фано, определяющим флуктуации в процессе генерации электронно-дырочных пар. В работе показано, что неправильный подход к описанию процессов, происходящих в сцинтилляционном спектрометре при регистрации частиц, в работах [1, 2] привел к ошибочному утверждению открытия субпуассоновской статистики для световых фотонов в сцинтилляционных детекторах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Boussselham A. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2010. V. 620. P. 359.
2. Bora V. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2016. V. 805. P. 72.
3. Samedov V.V. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. V. 691. P. 168.
4. Samedov V.V. // X-Ray Spectrom. 2019. V. 48. P. 597.
5. Loudon R. The Quantum Theory of Light. 2000. New York: Oxford Univ. Press.
6. Fox M. Quantum Optics: An Introduction. 2006. New York: Oxford Univ. Press.
7. Mandel L., Wolf E. Optical Coherence and Quantum Optics. 1995. Cambridge: Cambridge Univ. Press.
8. Samedov V.V. // EPJ Web Conf. 2020. V. 225. P. 01007.
9. Samedov V.V. // Phys. At. Nucl. 2019. V. 82. P. 1647.
10. Devanathan R. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2006. V. 565. P. 637.

Discovery of Sub-Poissonian Statistics of Light Photons in Scintillators That Did Not Take Place

V. V. Samedov*

National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

*e-mail: v-samedov@yandex.ru

Received August 20, 2021; revised August 20, 2021; accepted August 20, 2021

Abstract—When considering X-ray radiation registration by a scintillation detector, A. Boussselham et al. (Photoelectron Anticorrelations and Sub-Poisson Statistics in Scintillation Detectors), introduced two Fano factors (the Fano factor for scintillation photons and the Fano factor for photoelectrons). They stated their experimental data provided direct evidence for sub-Poissonian statistics for light photons in scintillators. An accurate mathematical description of the processes in the X-rays registration by a scintillation detector allows one to obtain the correct formulas for the mean value, the output signal variance of photodetectors, and the formula for the covariance between the signals of photodetectors. An analysis of these formulas allows one to conclude that a scintillation detector should be characterized by only one Fano factor, which determines the

fluctuations of the electron–hole pair generation process in the scintillator. Since the Fano factor for electron–hole pairs in scintillators is on the order of 0.1, this fact explains the results obtained in the article. Thus, the discovery of sub-Poissonian statistics for light photons in scintillators did not take place.

Keywords: scintillation detector, photodetector, energy resolution, light collection, Fano factor, covariance between signals, photocount statistics, sub-Poissonian statistics

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 621.327.7

ВЛИЯНИЕ ВСПОМОГАТЕЛЬНОГО РАЗРЯДА НА ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ИМПУЛЬСНЫХ ЦЕЗИЕВЫХ ИСТОЧНИКОВ ИЗЛУЧЕНИЯ

© 2022 г. С. В. Гавриш*

ООО «Научно-производственное предприятие «Мелитта», Москва, 117997 Россия

*E-mail: svgavr@list.ru

Поступила в редакцию 13.05.2022 г.

После доработки 13.05.2022 г.

Принята к публикации 16.05.2022 г.

Работа посвящена изучению формирования сильноточной стадии импульсного разряда в парах цезия из непрерывно горящего вспомогательного плазменного канала. Проведено сопоставление электрофизических параметров и характеристик излучения импульсного разряда при наличии и отсутствии вспомогательного разряда. Даны рекомендации по выбору параметров источника электрического питания вспомогательного разряда для обеспечения стабильности импульсов излучения в импульсно – периодической структуре выходных сигналов оптико – электронных систем.

Ключевые слова: импульсный разряд, цезий, вспомогательный разряд, пиковая сила излучения, длительность импульса, глубина модуляции, средний ИК-диапазон спектра

DOI: 10.56304/S2079562922030149

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время многолетние исследования импульсного разряда в парах цезия высокого давления привели к созданию нового поколения модулируемых источников инфракрасного (ИК) излучения (газоразрядных ламп) с двумя сапфировыми оболочками для оптико – электронных систем (ОЭС) специального назначения [1]. Основными эксплуатационными характеристиками указанных газоразрядных ламп являются три взаимозависимых параметра: пиковая сила A , глубина модуляции m и длительность $t_{0.5}$ по уровню 0.5 импульса излучения [1]. Понятно, что для обеспечения высоких значений A и m требуется поступление энергии в цезиевый разряд за минимально возможное время. Одновременно, эксплуатационные требования, предъявляемые к ОЭС, заключаются в необходимости формирования импульсно – периодической структуры ИК излучения с максимально возможной длительностью вспышки $t_{0.5}$. Поэтому при создании цезиевых модулируемых источников ИК излучения встает задача получить компромисс между величинами A , m и $t_{0.5}$. Во-первых, все перечисленные параметры определяются как конструктивными характеристиками (диаметр и длина плазменного канала, состав наполнения, толщина стенки сапфировой оболочки и т.д.), так и теплофизическим состоянием цезиевой плазмообразующей среды

(осевая температура, продольный и радиальный тепловой профиль разряда, теплопроводность рабочей смеси и т.д.) [2]. Во-вторых, характеристики излучения газоразрядных импульсных ламп существенно зависят от режимов электрического питания. Пиковая сила и длительность вспышки, частота следования импульсов, яркость разряда и спектральный состав излучения обусловлены параметрами питающих устройств: емкостью рабочего конденсатора и напряжением на нем, индуктивностью разрядного контура, наличием вспомогательного разряда (дежурной дуги) и т.д. [3]. В итоге, вопрос изучения влияния параметров разрядного контура при непрерывно горящей дежурной дуге на формирование плазменного канала, обеспечивающего в течение вспышки требуемые характеристики импульса ИК излучения, является актуальной задачей. Частичному решению описанных проблем посвящена данная публикация.

1. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ РАБОТЫ ИМПУЛЬСНОЙ ЛАМПЫ В РАЗРЯДНОМ КОНТУРЕ С ВСПОМОГАТЕЛЬНЫМ РАЗРЯДОМ

Наиболее обстоятельно вопрос функционирования газоразрядных источников излучения в электрической цепи рассмотрен в монографии [4], где основное внимание уделено импульсным ксеноновым лампам. Разряд в парах щелочных

металлов представляет более многофакторное состояние плазмы, но основные закономерности влияния параметров разрядного контура на свойства ксеноновой плазмы могут быть использованы применительно к импульсным цезиевым лампам.

Актуальность использования вспомогательного разряда в импульсных источниках ИК излучения обусловлена важной особенностью работы оптико – электронной системы (ОЭС) специального назначения [1, 2]. Требования функционального назначения ОЭС ставят задачу формирования импульсно – периодической структуры излучения ламп, т.е. в промежутке между серией силовых импульсов тока необходимо обеспечить паузу длительностью в несколько сотен миллисекунд. Понятно, что в такой ситуации в плазменном канале сразу после отключения питающих напряжений происходит полная деионизация разрядного промежутка лампы. В результате, чтобы снова сформировать сильноточный плазменный канал для новой серии импульсов тока потребуются выполнить импульсный пробой межэлектродного промежутка. В условиях импульсного разряда в парах цезия, ограниченного системой двух сапфировых оболочек, техническая реализация такой задачи проблематична в силу нескольких причин, подробно рассмотренных автором в работах [5].

В итоге становится понятным, что в паузах между сериями силовых импульсов тока, требуется поддержание проводящего состояния разрядного промежутка импульсной цезиевой лампы. При этом интенсивность излучения вспомогательного разряда должна быть минимальной. Единственным техническим решением в обозначенной ситуации является обеспечение непрерывного горения слаботочного вспомогательного разряда между серией импульсов. При этом возможны два варианта дежурной дуги. Во-первых, подключение источника электрического питания вспомогательного разряда должно осуществляться между сериями импульсов тока. Во-вторых, формирование сильноточной стадии разряда происходит в постоянно горящем слаботочном плазменном канале. В данной работе в силу причин, рассмотренных ниже, нами используется второй тип вспомогательного разряда, позволяющий обеспечить импульсно – периодическую структуру излучения с переменной амплитудой и длительностью оптических сигналов ОЭС.

Информация об использовании дежурной дуги для стабилизации разрядов в парах металлов весьма ограничена [6–8], из которой можно выделить только следующие два факта:

– при отсутствии дежурной дуги за время прохождения импульсов тока через лампу осевое распределение импеданса близко к равномерному, а во время пауз основная часть локализуется вбли-

зи электродов, уменьшается площадь охвата их и, следовательно, возрастает распыление. Использование дежурной дуги уменьшает импеданс на электродах [8];

– поддержание постоянного тока в интервалах между импульсами дает возможность легко управлять давлением щелочных металлов и контролировать параметры источника излучения, так как напряженность электрического поля дежурной дуги пропорциональна корню квадратному из давления паров добавок [6]. Других данных по работе импульсных цезиевых ламп при наличии вспомогательного разряда в научной литературе нами не обнаружено.

Как уже отмечалось, значительная часть научных исследований была посвящена изучению влияния вспомогательного разряда на свойства ограниченной кварцевой оболочкой плазмы инертных газов. Например, установлено, что при работе ксеноновых и криптоновых ламп на повышенной частоте следования токовых импульсов (400–800 Гц) излучение характеризуется временной и амплитудной нестабильностью [9, 10]. Для устранения этого недостатка в работе [9] предлагается использовать режим дежурной дуги, который помимо улучшения воспроизводимости импульсов излучения устраняет возможность пропусков в последовательности импульсов тока и, как следствие, погасание разряда. Проведенные другими авторами [11] исследования позволили дополнительно определить следующие преимущества работы лампы при наличии вспомогательного разряда, а именно:

– повышается амплитуда и уменьшается длительность импульса излучения;

– возрастает долговечность газоразрядной лампы за счет исключения из разрядного контура источника высоковольтного поджигающего импульса, что приводит к уменьшению налетов продуктов распыления электродов на оболочке;

– появляется возможность повышения выходной мощности излучения при работе с малыми удельными энергиями, поскольку уменьшаются потери на энергию ионизации разрядного промежутка при зажигании лампы.

В итоге оказывается, что формирование сильноточного разряда в непрерывно горящем канале дежурной дуги энергетически выгодно и одновременно увеличивает срок службы импульсной цезиевой лампы. В то же время остается открытым вопрос о влиянии такого способа формирования плазменного канала на основные характеристики ИК излучения (A , m и $t_{0,5}$) рассматриваемой газоразрядной лампы.

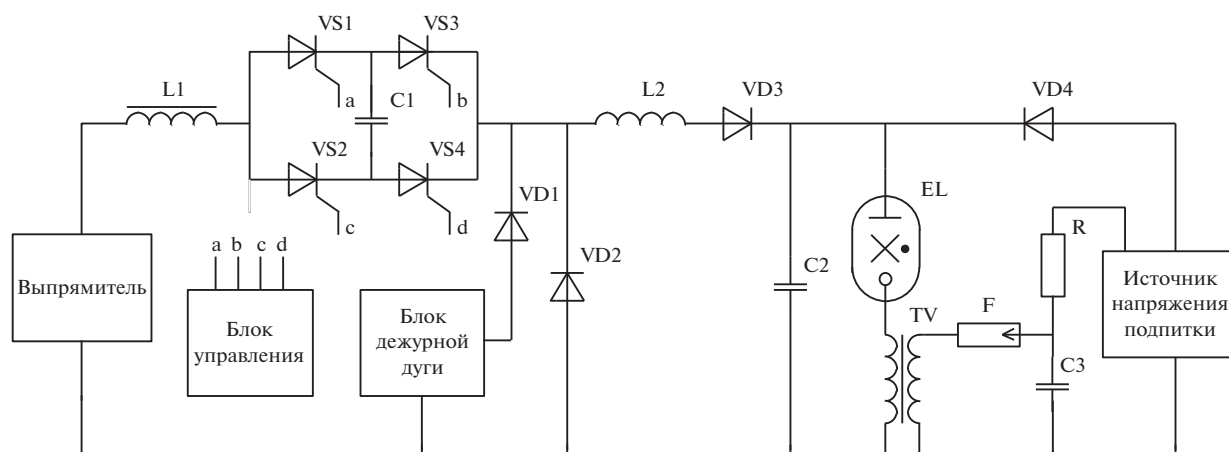


Рис. 1. Блок-схема источника электрического питания исследуемой импульсной цезиевой лампы с двумя сапфировой оболочками. EL – сапфировая лампа, R – зарядное сопротивление, C1 – промежуточный конденсатор, C2 – разрядный конденсатор, C3 – блокировочный конденсатор, VD1 – VD4 – диоды, L1 – дроссель НЧ, L2 – дроссель, VS1...VS4 – тиристоры, TV – импульсный трансформатор, F – разрядник.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Сомнения в целесообразности применения вспомогательного режима связаны с тем, что наличие постоянно горящего канала между сильноточными импульсами будет способствовать возрастанию немодулируемого фонового ИК излучения лампы A_n , что неизбежно приведет к падению глубины модуляции m . Поэтому потребовались сравнительные испытания режимов работы импульсной цезиевой лампы с дежурной дугой и без нее.

2.1. Аппаратное обеспечение эксперимента

Для проведения экспериментальных исследований нами разработан универсальный источник электрического питания (рис. 1) импульсных цезиевых ламп, в состав которого вошли трансформатор с плавной регулировкой выходного напряжения на мощном выпрямителе, схема управления импульсным разрядом лампы, включающая модуль управления и тиристорный коммутатор (VS1–VS4) с рабочим конденсатором C2, блок дежурной дуги, источник напряжения подпитки для зажигания ламп по пленке цезия и устройство высоковольтного поджига (TV, F). С целью точного определения электрофизических характеристик параллельно испытуемой лампе подключался делитель напряжения, а последовательно устанавливался безиндуктивный шунт, что позволило нам контролировать осциллограммы подаваемого напряжения и тока, проходящего через лампу. Эти данные в реальном масштабе времени вводились в компьютер для проведения расчетов средней и мгновенной мощности, потребляемой лампой. За параметрами всех входящих в источник

питания блоков осуществлялся приборный контроль.

Экспериментальный источник электрического питания обеспечивал следующие характеристики:

- потребляемая мощность до 5 кВт;
- частота следования импульсов обеспечивалась 400, 450 и 500 Гц с возможностью подключения внешнего задающего генератора;
- регулируемое напряжение на рабочем конденсаторе от 0 до 560 В;
- емкость рабочих конденсаторов в пределах от 2 до 158 мкФ;
- индуктивность разрядного контура от 28.5 до 158 мкГн;
- стабилизированный ток дежурной дуги в пределах 0.8–2.5 А;
- напряжение подпитки в диапазоне от 0 до 1.8 кВ;
- импульсное зажигание с амплитудой 1-й полу волны не менее 8 кВ и частотой следования импульсов 5–10 Гц.

Принцип измерения характеристик излучения в среднем ИК диапазоне основан на измерении электрического сигнала на выходе фотодиода ФД-119 со спектральной чувствительностью в диапазоне 2.0–5.0 мкм, расчете силы излучения (при условии соблюдения “точности” источника) с учетом спектральных характеристик образцового и измеряемого источников, пересчете средних значений измеряемых величин в пиковые значения силы излучения и расчете коэффициентов глубины модуляции [1].

Таблица 1. Зависимость времени достижения максимального напряжения дежурной дуги $U_{д.д.макс}$ от наполнения лампы и напряжения питающей сети U_c

№ п/п	Наполнение	t_{max} , мс	$U_{д.д.макс}$ при U_c , В	
			200	208
1.	12 мг Cs + 170 мм рт. ст. Xe	1.0	240	260
2.	12 мг Cs + 3 мг Hg + 50 мм рт. ст. Xe	0.7	260	290
3.	6 мг Cs + 170 мм рт. ст. Xe	2.0	150	150

2.2. Полученные результаты и их анализ

Возможность работы лампы без дежурной дуги определяется, в первую очередь, условиями эксплуатации (частота и длительность импульсов тока, наличие пауз и т.д.). Проведенные экспериментальные исследования показали, что в случае непрерывного режима работы со средней частотой 400–500 Гц, с заданными параметрами импульса излучения ($t_{0.5} = 130$ мкс) колоколообразной формы при мощности 2–2.5 кВт и энергии разряда 4–5 Дж возможна работа цезиевой лампы с двумя оболочками без дежурной дуги. При этом такой режим работы имеет следующие преимущества:

- глубина модуляции излучения лампы в среднем ИК диапазоне больше на величину 0.3–0.5%, чем при работе с дугой в тех же режимах;

- снижаются весогабаритные характеристики блока питания и энергопотребление на 0.2–0.3 кВт.

На рис. 2 приведены осциллограммы напряжения, тока, излучения и полученное расчетным путем изменение сопротивления разряда при работе лампы с дежурной дугой и без нее.

Из осциллограмм импульсов напряжения (рис. 2а) видно, что для ионизации разрядного промежутка необходимо приложить напряжение U_1 в 1.5 раза больше, чем в случае с дежурной дугой U_2 . Такой эффект объясняется необходимостью поступления большей энергии в разряд для достижения рабочей температуры плазмообразующей среды. По этой причине наблюдается временной сдвиг начала форсированной ионизации (роста тока) и, соответственно, импульса излучения (рис. 2г). При этом токовые импульсы по амплитуде, длительности, скорости нарастания и спада фронтов одинаковы в обоих случаях.

В то же время для излучения в среднем ИК диапазоне (рис. 2г) наблюдается время нарастания импульса короче на 15 мкс, а спада длиннее на 70 мкс при использовании дежурной дуги. Это объясняется более быстрым ростом температуры плазмы, предварительно подогретой дежурной дугой, которая, в свою очередь, препятствует температурной релаксации в случае спада импульса излучения. Это хорошо видно по изменению сопротивления разряда R , приведенного на рис. 2в.

В итоге получается, что импульсы излучения при работе лампы с дежурной дугой имеют большее значение длительности $t_{0.5} = 176$ мкс, чем, а в случае ее отсутствия, где $t_{0.5} = 157$ мкс (рис. 2г). Сопоставление осциллограмм импульсов тока и ИК излучения (рис. 2б и 2г) показывает их схожесть между собой как при наличии вспомогательного разряда, так и без него. Как подчеркивалось ранее, данный результат очень важен для обеспечения функциональных характеристик ОЭС. Необходимо отметить, что наблюдается задержка максимума импульса излучения по отношению к максимуму импульса тока (рис. 2б и 2г). При этом отношение времени достижения пикового значения к длительности импульса, рассчитанное в работе [12] для ксенонового разряда составляет 13.6%, а в нашем случае увеличивается до 24%. Данное явление связано с медленным повышением электронной температуры вследствие более высокой теплопроводности цезиевой плазмообразующей среды.

После прохождения импульса тока, т.е. в момент отключения разряда накопительного конденсатора, сопротивление плазмообразующей среды (рис. 2в) очень мало (около 0.2–0.5 Ом), но в промежутке между токовыми импульсами R восстанавливается до определенной величины, определяемой напряжением холостого хода и мощностью источника питания вспомогательного разряда. При этом в работе лампы с дежурной дугой можно выделить два этапа: выход в номинальный режим и стационарное горение. В каждом случае напряжение дежурной дуги ведет себя по-разному. Осциллограммы импульсов напряжения при выходе в рабочий режим и при установившемся горении отличаются временем нарастания величин, причем последний режим имеет ярко выраженный максимум $U_{д.д.макс}$. Как следует из табл. 1 на время достижения максимального напряжения дежурной дуги t_{max} после окончания разряда накопительного конденсатора до значения $U_{д.д.макс}$ влияет прежде всего наполнение лампы. Результаты исследования зависимости t_{max} от наполнения лампы 7/90 приведены в табл. 1.

Исследования лампы проводились при питании блока дежурной дуги от генератора, который позволял регулировать выходное напряжение U_c

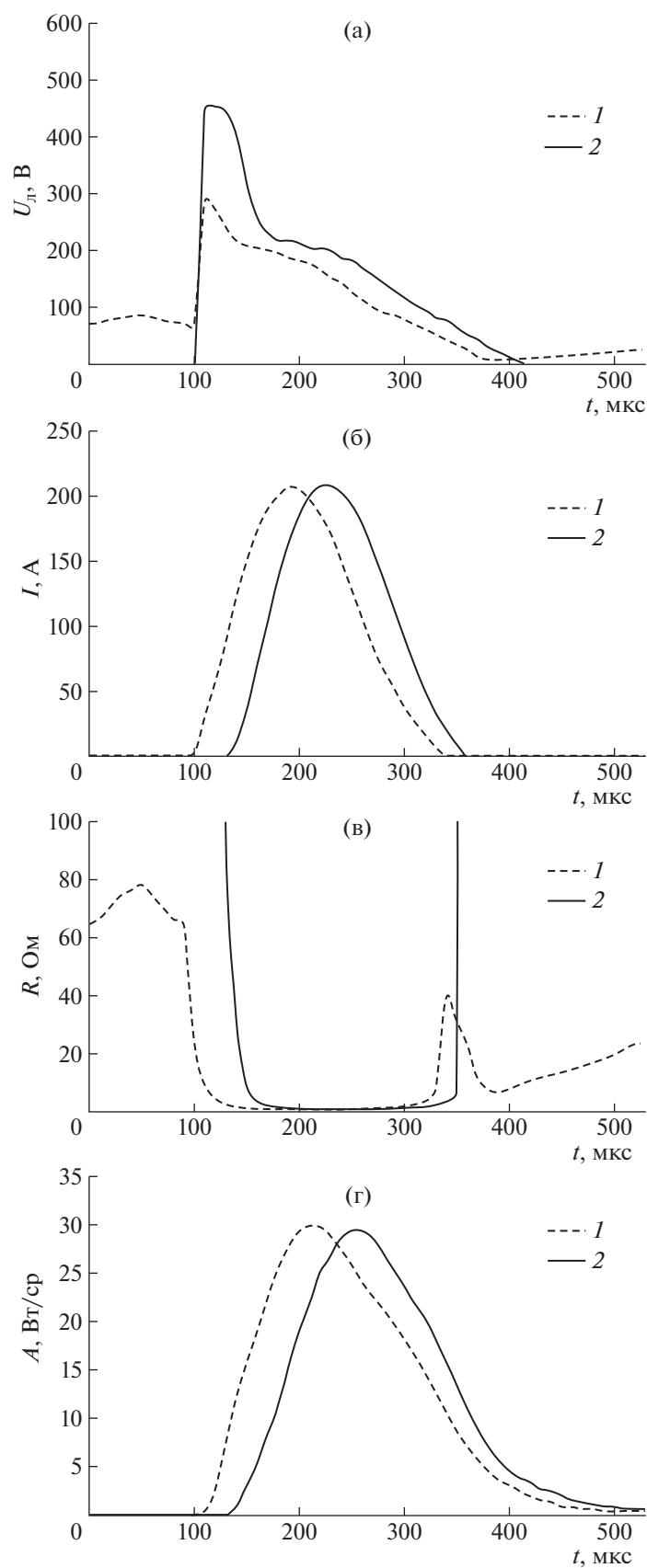


Рис. 2. Осциллограммы импульсов напряжения (а), тока (б), сопротивления (в) и излучения в среднем ИК диапазоне (г) при работе цезиевой лампы с дежурной дугой (1) и без нее (2).

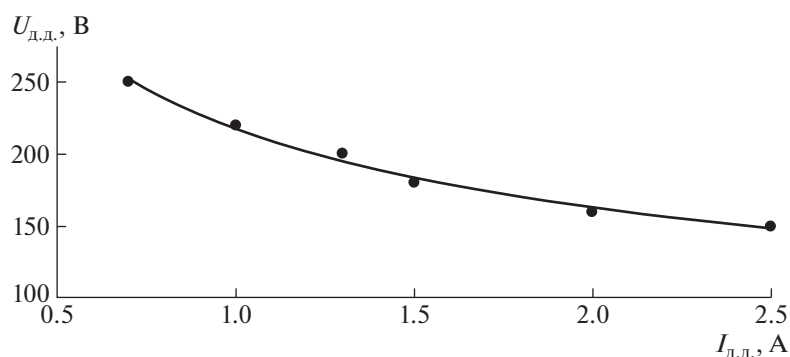


Рис. 3. Зависимость напряжения дежурной дуги от тока.

от 190 до 208 В. Как следует из табл. 1, минимальное время стабилизации напряжения дежурной дуги наблюдается у ламп с цезий – ртуть – ксеноновым наполнением. Это объясняется быстрым нарастанием температуры в центре разряда при наличии ртутного буфера. Минимальное значение $U_{д.д.макс} = 150$ В, независящее от напряжения сети, получено для ламп 7/90 с наполнением 6 мг цезия. Если принять температуру холодной точки равной $T_{х.т.} = 700^{\circ}C$, то для достижения давления насыщенных паров цезия, согласно уравнению Менделеева–Клапейрона, потребуется 9 мг. Следовательно, в этой лампе разряд происходит в насыщенных парах уже при $T = 550^{\circ}C$ и дополнительное повышение мощности дежурной дуги, при увеличении U_c , не влияет на давление паров и, соответственно, $U_{д.д.макс}$.

Величина $U_{д.д.макс}$ определяет работоспособность лампы с дежурной дугой. В случае равенства $U_{д.д.макс}$ и напряжения на накопительном конденсаторе лампа сразу гаснет [11].

В результате исследований выявлено, что напряжение $U_{д.д.макс}$ зависит от следующих факторов: напряжения питания блока дежурной дуги, давления добавок, режима охлаждения, тока дежурной дуги $I_{д.д.}$.

Давление паров щелочного металла и режимы охлаждения связаны между собой. Так как холодная точка лампы находилась за катодным узлом, то при установке газоразрядного источника излучения в “утепленную” цангу блока излучателя, происходит рост $T_{х.т.}$ и давления добавок и, как следствие, увеличивается $U_{д.д.макс}$ за счет повыше-

ния времени релаксации плазмы. Так как блок дежурной дуги является стабилизатором тока, то возможно снижение $U_{д.д.макс}$ только за счет увеличения тока дежурной дуги.

Для получения зависимости $U_{д.д.макс} = f(I_{д.д.})$ была испытана лампа 7/90 с наполнением 12 мг Cs, 3 мг Hg и 50 мм рт. ст. Хе в разрядном контуре $C = 34$ мкФ, $L = 20$ мкГн при мощности 2 кВт и частоте следования токовых импульсов 476 Гц. Как следует из рис. 3 напряжение $U_{д.д.макс}$ уменьшается от 250 до 150 В при росте тока дежурной дуги от 0.7 до 2.5 А. Уже при $I_{д.д.} = 1$ А и более исчезает амплитудная нестабильность, при этом увеличение тока дежурной дуги нежелательно, так как увеличивается интенсивность немодулируемого излучения. Это подтверждают результаты исследований той же лампы и в тех же режимах, которые сведены в табл. 2.

В табл. 2 приведены значения для качественной оценки, соответствующие показаниям осциллографа. Из приведенных данных следует, что увеличение тока с 1.0 до 2.0 А приводит к снижению глубины модуляции на 1%, при этом остальные характеристики излучения A , $t_{0.5}$ остаются неизменными. Таким образом, для обеспечения функциональных характеристик ОЭС для импульсных цезиевых источников ИК излучения мощностью до 2.5 кВт нами рекомендован ток вспомогательного разряда не превышающий 1.0 А.

Таблица 2. Зависимость излучательных характеристик лампы от тока дежурной дуги

№ п/п	$I_{д.д.}, A$	U_c, B	A, B	A_n, B	$t_{0.5}, мкс$	$U_{д.д.макс}, B$	$m, \%$
1.	1.0	200	3.92	0.28	142	250	93.3
2.	1.5	200	3.92	0.3	142	210	93.0
3.	2.0	200	3.92	0.328	140	180	92.3

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных теоретического анализа и экспериментальных исследований установлено, что развитие сильнооточной стадии разряда в парах цезия при наличии непрерывно горящего плазменного канала является энергетически выгодным способом формирования импульсно – периодической структуры излучения в средней ИК области спектра. При этом применение режима дежурной дуги дополнительно дает целый ряд положительных эффектов, обеспечивающих повышение эксплуатационных характеристик импульсных цезиевых ламп:

- Развитие сильнооточного токового импульса происходит за счет симметричного расширения канала вспомогательного разряда, поэтому не происходит локального перегрева внутренней поверхности оболочки лампы, что повышает долговечность лампы.

- Вспомогательный разряд обеспечивает зажигание импульсной цезиевой лампы в случае наличия на поверхности оболочки цезиевой пленки, шунтирующей электроды.

- Напряжение дежурной дуги служит показателем давления паров цезия в разряде и позволяет за счет обратной связи в цепи электрического питания лампы регулировать ее характеристики излучения.

- Вспомогательный разряд обеспечивает амплитудную стабильность импульсов излучения в импульсно – периодической структуре выходного сигнала ОЭС.

Автор выражает надежду, что представленные результаты будут полезны разработчикам изделий плазменной электроники, основанных на использовании разряда высокого давления в парах щелочных металлов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Гавриш С.В., Логинов В.В., Пучнина С.В. // Успехи прикладной физики. 2018. Т. 6 (4). С. 333–348.
2. Гавриш С.В., Гайдуков Е.Н., Константинов Б.А. и др. // Светотехника. 1998. № 3. С. 22–24.
3. Гавриш С.В., Градов В.М., Терентьев Ю.И. // Светотехника. 2008. № 2. С. 12–18.
4. Маршак И.С., Дойников А.С., Жильцов В.П. и др. Импульсные источники света (2-е изд., перераб. и доп.). 1978. Москва: Энергия.
5. Гавриш С.В. // Прикладная физика. 2018. № 6. С. 84–89.
6. Bayha W.T., Creedon J. E., Schneider S. // IEEE Trans. Electron Dev. 1970. V. 17 (8). P. 612–616.
7. Gunther K., Kloss H.G., Lehmann T. et al. // Contrib. Plasma Phys. 1990. V. 30 (9). P. 715–724.
8. Schafer R., Stormberg H.P. // J. Appl. Phys. 1985. V. 57 (7). P. 2512–2518.
9. Richards J., Rees D., Fueloen K. // Appl. Opt. 1983. V. 22 (9). P. 1325–1328.
10. Лагутин Л.Ф., Мустецов Н.П., Зарудный А.А. // Приборы и техника эксперимента. 1984. № 2. С. 178–180.
11. Басов Ю.Г., Михалина Т.И., Никифоров В.Г., Соппин А.И. // Журнал прикладной спектроскопии. 1974. Т. 32 (4). С. 602–606.
12. Walsh P.J., Lama W., Hammond T.J. // J. Appl. Phys. 1984. V. 23 (2). P. 290–292.

Influence of Auxiliary Discharge on the Electrophysical Characteristics of Cesium Pulsed Radiation Sources

S. V. Gavrish*

Research and Development Company Melitta, Moscow, 117977 Russia

*e-mail: svgavr@list.ru

Received May 13, 2022; revised May 16, 2022; accepted May 16, 2022

Abstract—The work is devoted to studying the formation of a high-current stage of a pulsed discharge in cesium vapor from a continuously burning auxiliary plasma channel. A comparison of the electrophysical parameters and the radiation characteristics of a pulsed discharge in the presence and absence of an auxiliary discharge was made. Recommendations for choosing the parameters of the auxiliary discharge source of power to ensure the stability of radiation pulses of opto-electronic systems were given.

Keywords: pulsed discharge, cesium, auxiliary discharge, peak radiant flux, pulse duration, modulation index, mid-IR range

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 539.126

ПОИСК СТАНДАРТНОГО БОЗОНА ХИГГСА И ТЯЖЕЛОГО РЕЗОНАНСА В КАНАЛЕ РАСПАДА $WW^{(*)} \rightarrow (e\bar{e}\nu\nu + \mu\bar{\mu}\nu\nu)$ В ЭКСПЕРИМЕНТЕ ATLAS

© 2022 г. А. А. Гаврилюк^а, Е. Н. Рамакоти^{а, *}, И. И. Цукерман^а^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, 123182 Россия*E-mail: ekaterina.ramakoti@itep.ru

Поступила в редакцию 28.06.2022 г.

После доработки 28.06.2022 г.

Принята к публикации 30.06.2022 г.

Авторами в составе рабочей группы HWW эксперимента ATLAS на LHC изучены события с двумя мюонами и двумя электронами разных знаков заряда для поиска стандартного бозона Хиггса H и тяжелого резонанса R в канале распада на два W -бозона. Анализ проводился на полной статистике событий протон–протонных столкновений за 2015–2018 гг. при энергии в их системе центра масс $\sqrt{s} = 13$ ТэВ. Благодаря использованию глубокой нейронной сети удалось существенно улучшить наши предыдущие результаты по выделению сигнала от H -бозона в механизме рождения за счет слияния векторных бозонов. В рамках различных теоретических моделей рассчитаны новые ожидаемые верхние пределы на сечение рождения R со спином 0, 1 или 2 в дополнение к полученным ранее в игрушечной модели NWA для тяжелого бозона Хиггса.

Ключевые слова: бозон Хиггса, тяжелый резонанс, канал распада на два W -бозона, эксперимент ATLAS, LHC

DOI: 10.56304/S2079562922030137

ВВЕДЕНИЕ

Канал $H \rightarrow WW^*$ с относительной вероятностью распада (BR) 21.6% [1] сыграл существенную роль в открытии бозона Хиггса Стандартной Модели (СМ) с массой 125 ГэВ на Большом адронном коллайдере (LHC) в CERN в экспериментах ATLAS и CMS [2]. Предварительные результаты исследования этого канала с конечным состоянием $e\nu\mu\nu$ при $\sqrt{s} = 13$ ТэВ были недавно опубликованы [3]. В данной работе рассматриваются существенно более сложные для экспериментального изучения состояния $H \rightarrow WW^* \rightarrow e\bar{e}\nu\nu$ и $H \rightarrow WW^* \rightarrow \mu\bar{\mu}\nu\nu$, для которых преобладает дополнительный фон от процессов Дрелла-Яна (DY) $Z^{(*)} \rightarrow e\bar{e}/\mu\bar{\mu}$, тогда как в случае $e\mu/\mu e$ есть только сравнительно небольшой вклад от цепочки распадов $Z^{(*)} \rightarrow \tau\tau \rightarrow (e\mu/\mu e) + X$. Другие фоновые процессы в этих каналах ведут себя сходным образом. Конечная цель нашего исследования — повысить точность измерения констант связи H -бозона в механизме рождения за счет слияния векторных бозонов (VBF). Поскольку нам не удалось достичь существенной значимости сигнала в простом анализе [4], нами были использованы глубокие нейронные сети DNN, которые ранее были успешно применены в аналогичном анализе конечного состояния $e\nu\mu\nu$ [3].

Поиск тяжелого резонанса R в канале распада $WW \rightarrow e\nu\mu\nu$ ранее проводился при $\sqrt{s} = 13$ ТэВ на данных 2015–2016 гг. в экспериментах ATLAS и CMS [5]. Он не был обнаружен и были поставлены верхние пределы на сечение его рождения в широком диапазоне масс в рамках различных теоретических моделей. Цель настоящей работы — существенно улучшить эти верхние пределы путем поиска R в каналах распада $e\bar{e}\nu\nu$ и $\mu\bar{\mu}\nu\nu$. По сравнению с нашими предыдущими исследованиями [6], были подсчитаны ожидаемые верхние пределы на сечение рождения резонанса со спином 0, 1 или 2 в рамках нескольких моделей, а не только для скаляра в игрушечной модели NWA.

Все работы проводились в составе группы HWW сотрудничества ATLAS.

ИЗУЧЕНИЕ СТАНДАРТНОГО БОЗОНА ХИГГСА

Как было показано ранее [4], с помощью простого анализа не удастся достичь значимости сигнала от H -бозона в механизме рождения VBF $> 0.5\sigma$ в канале распада $H \rightarrow WW^* \rightarrow (e\bar{e}\nu\nu + \mu\bar{\mu}\nu\nu)$. Поэтому естественным было применить глубокую нейронную сеть (DNN), успешно использованную ранее в выделении аналогичного сигнала в случае $H \rightarrow WW^* \rightarrow e\nu\mu\nu$ [3]. Основные критерии отбора с

Таблица 1. Отбор событий с двумя мюонами или двумя электронами для изучения бозона Хиггса в механизме рождения VBF

Переменная	Критерии
Поперечный импульс лептонов	$p_{T1}^{e\ell} > 22 \text{ ГэВ}/c$ $p_{T2}^{e\ell} > 15 \text{ ГэВ}/c$
Инвариантная масса лептонов	$m_{\ell\ell} > 12 \text{ ГэВ}/c^2$
Z veto	$ m_{\ell\ell} - m_Z > 15 \text{ ГэВ}/c^2$
Число адронных струй	$N_{\text{jets}} \geq 2$
b-jets veto	$N_{\text{bjets}} = 0$
Z/DY $\rightarrow \tau\tau$ veto	$m_{\tau\tau} < m_Z - 25 \text{ ГэВ}/c^2$
Инвариантная масса адронных струй	$m_{jj} > 120 \text{ ГэВ}/c^2$
Запрет на центральную струю	CJV (20 ГэВ)
Запрет на внешний лептон	OLV
Применение DNN	

применением DNN представлены в табл. 1. Сначала используются ограничения по поперечному импульсу и инвариантной массе лептонов и вырезается Z-пик; затем на основе топологии механизма VBF отбираются события по крайней мере с двумя адронными струями с инвариантной массой более $120 \text{ ГэВ}/c^2$, подавляются фоны с помощью b-veto и Z $\tau\tau$ -veto; после этого применяются CJV и OLV критерии для отсекаания третьих ад-

ронных центральных струй и внешних лептонов. На рис. 1а показано распределение по выходному параметру сети DNN, натренированной в канале $e\nu\bar{\nu}\nu$, а также ожидаемая значимость сигнала. Она составляет 0.9σ , что существенно превышает результат простого анализа. За исключением DY, все остальные процессы имеют схожую динамику, поэтому нейросеть имеет в этом случае неоптимизированный отклик только на DY процесс. Для его дополнительного подавления использовалось ограничение на значимость недостающей поперечной энергии $S(E_T^{\text{miss}}) > 6$ или 4 для интервалов выходной переменной DNN $(0.25, 0.83]$ или $(0, 0.25] \cup (0.83, 1]$ соответственно, поскольку эта характеристика хорошо позволяет отделить события DY от сигнала (см. рис. 1б). Итоговое улучшенное распределение выходного параметра нейросети показано на рис. 2а с ожидаемой значимостью сигнала 2.1σ . Предварительные результаты собственной тренировки DNN в канале $e\nu\bar{\nu}\nu/\mu\nu\bar{\nu}\nu$ с учетом событий DY выглядят перспективно — удастся достичь значимости 3.1σ (рис. 2б). Другими способами улучшения значимости являются увеличение статистики смоделированных событий DY, а также использование алгоритма для подавления ложных передних струй [7], эти пути сейчас исследуются.

Отметим, что для подавления эффектов, связанных с наложенными струями в центральной области, используется информация с трекара, ко-

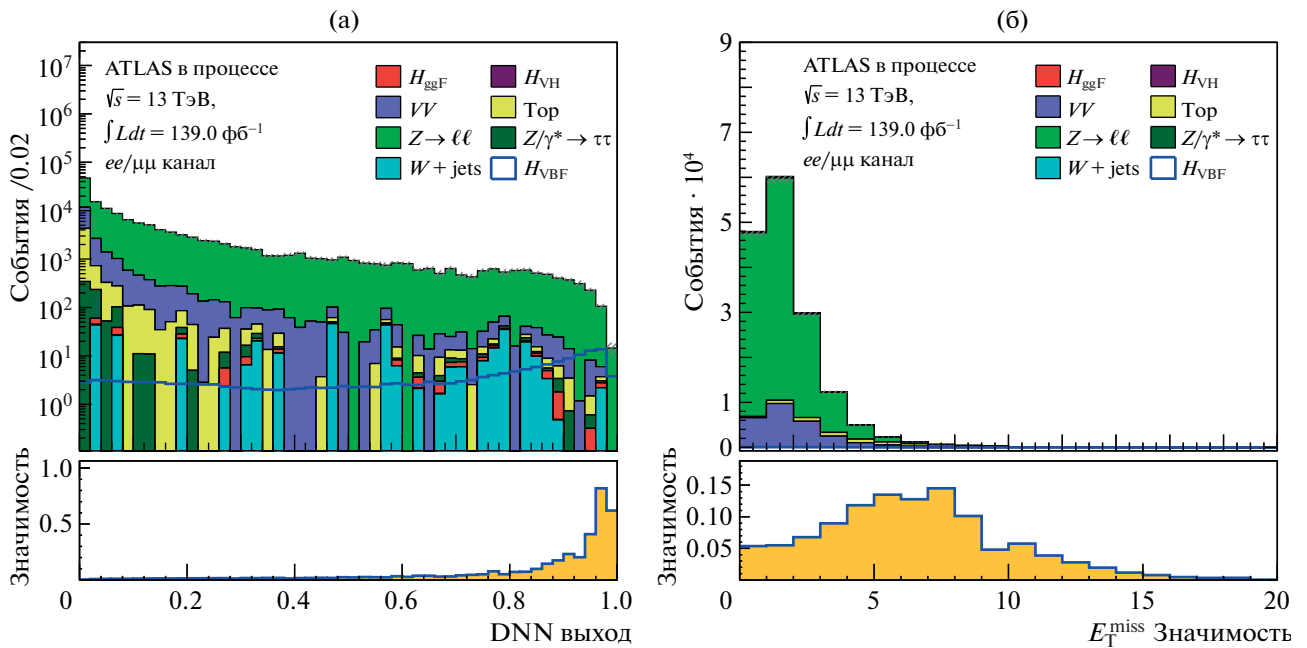


Рис. 1. Распределение выходного параметра DNN сети, натренированной на событиях с электроном и мюоном в конечном состоянии (а) и распределение значимости недостающей поперечной энергии после всех отборов (б). Под основным графиком представлено распределение значимости сигнала в каждом бине с учетом статистических неопределенностей.

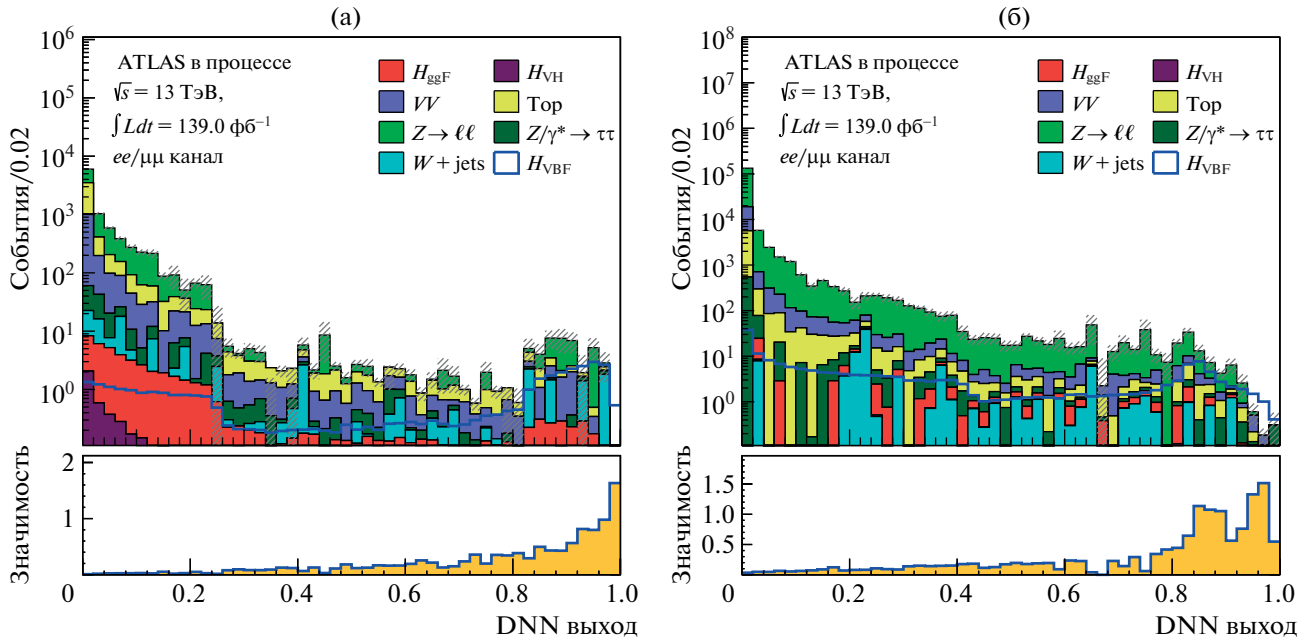


Рис. 2. Распределение выходного параметра DNN сети, натренированной на событиях с электроном и мюоном в конечном состоянии с дополнительным подавлением по $S(E_T^{\text{miss}})$ (а) и на событиях с парой электронов или мюонов в конечном состоянии (б). Под основным графиком представлено распределение значимости сигнала в каждом бине с учетом статистических неопределенностей.

торая позволяет надежно проверить, ассоциируется ли струя с $|\eta| < 2.5$ с вершиной жесткого взаимодействия или она связана с другой вершиной [8].

ПОИСК ТЯЖЕЛОГО РЕЗОНАНСА

Для поиска тяжелого резонанса R , распадающегося на пару W -бозонов, в конечное состояние $e\nu e\nu$ и $\mu\nu\mu\nu$, сначала были отобраны события с $S(E_T^{\text{miss}}) > 4$, что позволило уменьшить размер начального образца почти в 10 раз, а затем использовались критерии отбора, представленные в таблице 2. События были поделены на три непересекающиеся категории в зависимости от количества и параметров адронных струй с $p_T^{\text{jet}} > 30$ ГэВ/с. Наличие тагирующих струй, летящих в переднюю область детектора и разнесенных друг от друга (или от ближайшего лептона, если струя только одна) соответствует VBF- механизму рождения резонанса, остальные события соответствуют механизму слияния глюонов ggF (или аннигиляции кварков — qqA), подробнее см. в [5]. Распределение событий по поперечной массе в сигнальной области ggF показано на рис. 3а. Для интерпретации использовались различные теоретические модели. На рис. 3б и 4 для примера показаны ожидаемые верхние пределы на сечения рождения нового фермиофобного скаляра или вектор-

ного бозона Z' , помноженные на соответствующую относительную вероятность распада по каналу на два W -бозона ($\text{BR}(R \rightarrow WW)$) при рождении в механизмах qqA и VBF. Для Z' в модели HVT [8] эти верхние пределы варьируются от 3 пб при $m_{Z'} = 300$ ГэВ/с² до 8 фб при

Таблица 2. Основные критерии отбора событий с двумя мюонами или двумя электронами для поиска тяжелого резонанса. Последние два ограничения, помеченные звездочкой, зависят от категории событий

Переменная	Критерии
Поперечный импульс лептонов	$p_T^{\ell 0} > 45$ ГэВ/с, $p_T^{\ell 1} > 30$ ГэВ/с
Инвариантная масса лептонов	$m_{\ell\ell} > 55$ ГэВ/с ²
Z veto	$ m_{\ell\ell} - m_Z > 25$ ГэВ/с ²
b -jets veto	$N_{\text{bjets}} = 0$
Модуль азимутального угла между лептонами	$\Delta\phi_{\ell\ell} > 1.8$
Модуль разности псевдобыстрот лептонов	$\Delta\eta_{\ell\ell} < 1.8$
Значимость недостающей поперечной энергии	$S(E_T^{\text{miss}}) > 7$ (6, 5)*
Суммарный поперечный импульс объектов	$p_T^{\text{tot}} > 50$ (30, 20)* ГэВ/с

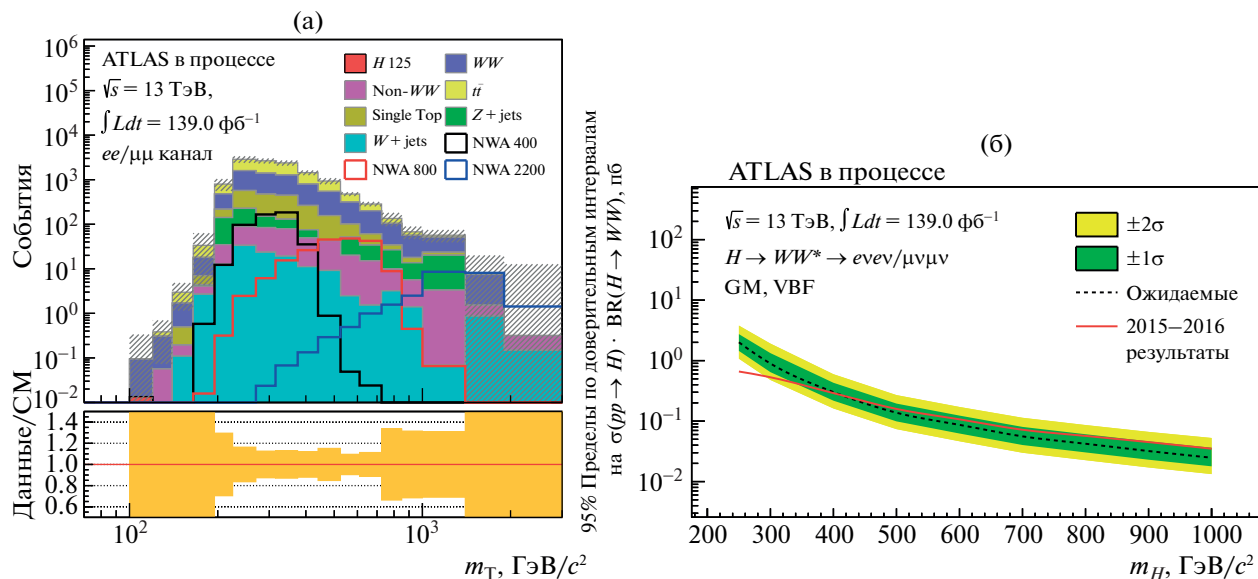


Рис. 3. (а) Распределение событий по поперечной массе в сигнальной области для механизма рождения ggF. (б) Ожидаемые верхние пределы на сечения рождения фермиофобного скаляра в модели GM, помноженные на $BR(H \rightarrow WW)$ при его рождении в механизме VBF для конечного состояния с двумя электронами или двумя мюонами. Красной линией показан опубликованный ранее результат [5] на четверти статистики, но для конечного состояния с электроном и мюоном.

$m_{Z'} = 5000 \text{ ГэВ}/c^2$ для механизма рождения qqA. При рождении в механизме VBF они составляют от 2 пб при $m_{Z'} = 300 \text{ ГэВ}/c^2$ до 12 фб при $m_{Z'} = 4000 \text{ ГэВ}/c^2$. Для первого механизма рождения наш результат более оптимистичен, чем опубликованный ранее на четверти статистики для конечного состояния с электроном и мюоном [5] почти во всем диапазоне исследуемых масс векторного резонанса. В случае фермиофобного скаляра GM [9], рожденного механизмом

VBF, ожидаемые верхние пределы меняются от 2 пб при массе 250 $\text{ГэВ}/c^2$ до 20 фб при массе 1000 $\text{ГэВ}/c^2$. Аналогичные пределы, но в диапазоне масс до 6 $\text{ТэВ}/c^2$ были рассчитаны для т.н. скалярного радиона в модели Randall–Sundrum [10]; они получились равными для механизма рождения ggF от 2 пб при 300 $\text{ГэВ}/c^2$ до 10 фб выше 3 $\text{ТэВ}/c^2$, а для механизма рождения VBF – от 1 пб при 300 $\text{ГэВ}/c^2$ до 10 фб выше 2 $\text{ТэВ}/c^2$. Наконец, для гравитона в модели Randall–Sundrum [10]

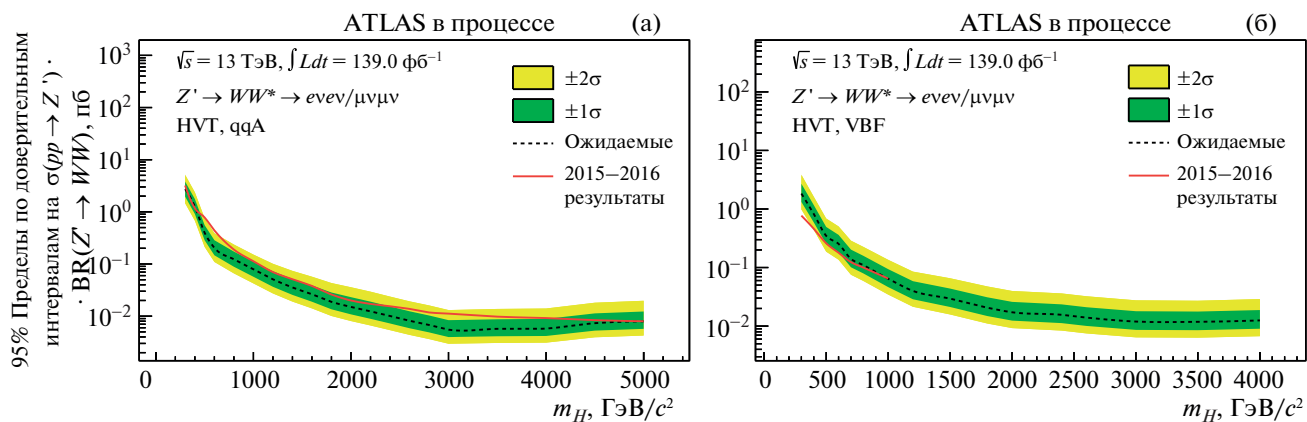


Рис. 4. Ожидаемые верхние пределы на сечения рождения векторного бозона Z' , помноженные на $BR(Z' \rightarrow WW)$ при его рождении в механизмах qqA (а) и VBF (б) для конечного состояния с двумя электронами или двумя мюонами. Красной линией показан опубликованный ранее результат [5] на четверти статистики, но для конечного состояния с электроном и мюоном.

рассчитанные пределы таковы: от 40 пб при $m_G = 200 \text{ ГэВ}/c^2$ до 20 фб при $m_G = 2000 \text{ ГэВ}/c^2$ в механизме рождения ggF и от 2 пб при $m_G = 300 \text{ ГэВ}/c^2$ до 10 фб при $m_G = 3000 \text{ ГэВ}/c^2$ в механизме рождения VBF. Интересно отметить, что ожидаемые верхние пределы не очень сильно зависят от модели, в рамках которой проводится интерпретация результатов.

В отличие от конечного состояния с электроном и мюоном, в случае ee и $\mu\mu$ есть вклад от распада резонанса на пару Z -бозонов (и интерференция с состоянием $WW \rightarrow \ell\nu\ell\nu$), если один из них распадается в два лептона, а второй — в два нейтрино. Нами проверено, что этот вклад $< 1\%$, за исключением масс в районе $300 \text{ ГэВ}/c^2$, где его величина около 5% , в предположении верности СМ, т.е., $\text{BR}(H \rightarrow WW)/\text{BR}(H \rightarrow ZZ) \approx 2$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Авторами в составе рабочей группы ATLAS по изучению бозона Хиггса (HWW) показано, что использование глубокой нейронной сети позволяет увеличить ожидаемую статистическую значимость сигнала в механизме рождения VBF в канале распада $WW^{(*)} \rightarrow (e\nu e\nu + \mu\nu\mu\nu)$ от 0.5σ до 3.1σ . Также рассчитаны ожидаемые верхние пределы на сечение рождения тяжелого резонанса в этом же канале распада в рамках различных теоретических моделей.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарят своих коллег по рабочей группе сотрудничества ATLAS (HWW) по изучению бозона Хиггса в канале $H \rightarrow WW^*$.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *De Florian D. et al.* // Report CERN-2017-002-M. <https://arxiv.org/pdf/1610.07922>.
2. *ATLAS Collab.* // Phys. Lett. B. 2012. V. 716. P. 1; *CMS Collab.* // Phys. Lett. B. 2012. V. 716. P. 30.
3. *ATLAS Collab.* // Report ATLAS-CONF-2021-014. <https://cds.cern.ch/record/2759651/files/ATLAS-CONF-2021-014.pdf>; *CMS Collab.* // J. High Energy Phys. 2021. V. 2021 (3). P. 003.
4. *Ramakoti E.N., Gavrilyuk A.A., Tsukerman I.I.* // Phys. At. Nucl. 2021. V. 84 (12). P. 2055.
5. *ATLAS Collab.* // Eur. Phys. J. C. 2018. V. 78. P. 24; *CMS Collab.* // J. High Energy Phys. 2020. V. 2020 (3). P. 034.
6. *Gavrilyuk A.A., Ramakoti E.N., Tsukerman I.I.* // Phys. At. Nucl. 2021. V. 84 (11). P. 1914.
7. *ATLAS Collab.* // Eur. Phys. J. C. 2017. V. 77. P. 590.
8. *Pappadopulo D., Thamm A., Torre R., Wulzer A.* // J. High Energy Phys. 2014. V. 2014 (9). P. 060, *De Blas J., Lizana J.M., Perez-Victoria M.* // J. High Energy Phys. 2013. V. 2013 (1). P. 166.
9. *Georgi H., Machacek M.* // Nucl. Phys. B. 1985. V. 262. P. 463.
10. *A. Oliveira* // arXiv: 1404.0102 [hep-ph]. 2014.

Search for the Standard Model Higgs Boson and a Heavy Resonance in the $WW^{(*)} \rightarrow (e\nu e\nu + \mu\nu\mu\nu)$ Decay Channel in the ATLAS Experiment

A. A. Gavrilyuk¹, E. N. Ramakoti¹, *, and I. I. Tsukerman¹

¹ National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

*e-mail: ekaterina.ramakoti@itep.ru

Received June 28, 2022; revised June 28, 2022; accepted June 30, 2022

Abstract—A study of events with two opposite-sign electrons and muons in the final state to search for Standard Model Higgs boson and heavy resonance in the decay channel to two W -bosons is performed in the ATLAS experiment at the LHC. Authors within the HWW group performed an analysis of events using full statistics of pp -collisions recorded during 2015–2018 year exposures at 13 TeV in their rest-frame. Thanks to a use of a deep neural network, we were able to improve significantly our previous results on the extraction of the H -boson signal in the vector-boson-fusion production mechanism. In the framework of different theoretical models new expected upper limits on a heavy resonance production cross section with spin 0, 1 and 2 were calculated in addition to those obtained earlier in the NWA toy model for a heavy Higgs boson.

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 539.231

ОМИЧЕСКИЕ ПОТЕРИ НАПРЯЖЕНИЯ НА ПРОЗРАЧНЫХ ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ ОКСИДНЫХ ЭЛЕКТРОДАХ ЭЛЕКТРОХРОМНЫХ МОДУЛЕЙ, ОСАЖДЕННЫХ ИЗ ПЛАЗМЫ МАГНЕТРОННОГО РАЗРЯДА, ПРИ ИХ ОКРАШИВАНИИ

© 2022 г. К. С. Новикова^{а, *}, В. В. Кравченко^{а, **}, Д. П. Княжев^а, Д. Д. Бернт^{а, b}, А. А. Писарев^b

^аАО “Октогласс”, Москва, 123112 Россия

^bНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия

*E-mail: k.novikova@octoglass.ru,

**E-mail: v.kravchenko@octoglass.ru

Поступила в редакцию 29.06.2022 г.

После доработки 05.07.2022 г.

Принята к публикации 11.07.2022 г.

Рассмотрены процессы, влияющие на омические потери напряжения на границе реакционно осажденных из плазмы магнетронного разряда тонкопленочных оксидных $\text{SnO}_2\text{:F}$ электродов и полимерного электролита внутри ячеек электрохромных устройств. Выявлена зависимость регистрируемого полного омического сопротивления устройства от величины совокупного накопленного в ходе его окрашивания заряда. Проведена оценка влияния площади устройства на вклад в его полное омическое сопротивление от сопротивления непосредственно тонкопленочных оксидных электродов. Предположение о присутствии случайного количества носителей заряда ЭХУ на поверхности его электродов в начальный момент процесса окрашивания, также привносящего вклад в начальное омическое сопротивление устройства, подтверждено посредством независимой импедансной спектроскопии электролитического слоя.

Ключевые слова: прозрачные тонкопленочные оксиды, F-легированный оксид олова, электрохромные устройства, реакционное магнетронное распыление, импедансная спектроскопия

DOI: 10.56304/S2079562922030332

ВВЕДЕНИЕ

На сегодняшний день все большее распространение получают электрохромные модули (ЭХМ) – устройства, изменяющие интегральную интенсивность пропускания электромагнитного излучения определенного диапазона длин волн под действием прикладываемого напряжения величиной, как правило, в несколько вольт. Они находят применение в таких прикладных областях, как фасадное и интерьерное остекление архитектурных объектов и транспортных средств, защита предметов искусства и культурного наследия, в качестве быстродействующих оптических заслонок в прецизионном оптическом и спектрофотометрическом оборудовании [1–3]. Распространенной конструкцией ЭХМ является многослойная тонкопленочная система, состоящая из электролитического слоя, в котором органический электрохромный материал растворен в полимерной матрице электролита, и окружающих его двух электродных слоев, изготовленных из прозрачных токопроводящих оксидов (ТСО –

transparent conductive oxides). Переключение состояния такой системы происходит за счет активации электрохромных материалов в ходе их электрохимической окислительно-восстановительной реакции при вызванном разностью потенциалов между электродами транспорте ионов [4, 5]. Часто применяемым материалом прозрачных электродов служит пленка F-легированного оксида олова $\text{SnO}_2\text{:F}$ [6], как правило осаждаемого реакционным распылением мишени в $\text{Ag} + \text{O}_2 + \text{CF}_4$ плазме магнетронного разряда [7].

Одной из проблем эксплуатации ЭХУ является риск превышения окислительно-восстановительного потенциала полимерных компонент системы, приводящего к необратимой деградации качеств электрохромного изменения интегрального светопропускания устройства в видимом диапазоне длин волн – т.н. “окрашивания” [4, 8–10]. С другой стороны, поддержание наибольшего допустимого управляющего напряжения обеспечивает наивысшую скорость окрашивания. Кроме того, недостаточное для активации реакции

окрашивания электрохромных компонент на границе электрод/полимер будет приводить к неполному окрашиванию ЭХУ по площади его поверхности — т.н. “эффект ириса” [11, 12]. В результате, для поддержания максимального безопасного управляющего напряжения необходимо иметь возможность учитывать падение потенциала от источника питания ЭХУ на границе полимерных слоев с неорганическими электродами в ходе окрашивания. Механизмы возникновения омических потерь в ЭХУ, однако, практически не изучены в современной литературе. Целью данной работы было изучение механизмов возникновения омических потерь на границе реакционно осажденных из плазмы магнетронного разряда тонкопленочных оксидных FTO электродов и полимерного электролита внутри ячеек электрохромных устройств.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Эксперименты по ионно-плазменному осаждению покрытий проводились на промышленной вакуумной магнетронной установке УВМ-1600. В качестве подложек выступали пластины натрий-силикатного стекла толщиной 2 мм и различных размеров: А6, А4 и А2. В качестве подготовки подложек образцов к осаждению покрытий осуществлялась их очистка в деионизованной воде, нагретой до температуры 65°C, с последующей просушкой осушенным сжатым воздухом. Прогрев подложек в ходе осаждения не осуществлялся.

Распыляемой мишенью для осаждения $\text{SnO}_2\text{:F}$ слоев служил сдвоенный планарный металлический катод GfE Sn 1500 × 270 × 6 мм с чистотой 2N5 = 99.5% (G1239), типом контактной поверхности M3750QVL (основание из нержавеющей стали, материал мишени нанесен термическим напылением) и размером микропор <2.5 мкм.

Напыление осуществлялось реакционным физическим осаждением из плазмы импульсного (20 кГц) магнетронного разряда постоянного тока в смешанной $\text{Ar} + \text{O}_2 + \text{CF}_4$ атмосфере рабочих газов, распылительной составляющей которой выступал аргон, напускавшийся постоянным потоком 104 см³/мин, а реакционных — кислород и тетрафторметан, потоки напуска которых варьировались в рамках серии экспериментов. Мощность горения разряда поддерживалась одинаковой для всех экспериментов и составляла 1 кВт. Толщина осажденного покрытия во всех экспериментах составляла 270 нм и контролировалась через время экспозиции подложки с оценкой, осуществлявшейся с использованием атомно-силовой микроскопии.

Электрохромная (ЭХ) матрица электролитического слоя изготавливалась путем замешива-

ния в органический электролит (пропилен карбонат) электрохромных компонент, после чего полученная смесь инжестировалась под давлением в предварительно собранный из двух образцов стекла с FTO покрытием стеклопакет (электродные слои обращены внутрь пакета), а затем подвергалась УФ-стабилизации.

Топология поверхности FTO слоев анализировалась с использованием сканирующей электронной микроскопией (СЭМ) Zeiss LEO SUPRA 25, снабженного ЭДС модулем для проведения элементного анализа.

Сопротивление ЭХ-матрицы определялось методом импедансной спектроскопии на потенциостате P-40X (Electro Chemical Instruments, Россия) в интервале частот 100 Гц—1 МГц на симметричных ячейках углерод/ЭХ-матрица/углерод с активной площадью 1 см² при 30°C. Сопротивление образцов электрохромных модулей определялось из годографов импеданса по высокочастотной отсечке на оси активных сопротивлений. Поверхностное сопротивление, а также холловская подвижность и концентрация носителей заряда электродных FTO слоев оценивались с использованием бесконтактного стратометра NAGY RSQ-2N.

Спектрофотометрия полученных образцов осуществлялась в режиме пропускания на UV/VIS/IR спектрометре PerkinElmer Lambda 950 в рабочем диапазоне длин волн 250—2500 нм.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Электрические качества осажденных при различном соотношении потоков напуска реакционных компонент смеси рабочих газов CF_4/O_2 слоев $\text{SnO}_2\text{:F}$ -покрытия, а также спектры их пропускания представлены на рис. 1. Можно заметить, что повышение парциальной доли CF_4 по отношению к O_2 в смеси рабочих газов, а, следовательно, и легирующей компоненты F по отношению к атомам кислорода в составе осажденного покрытия, способствует повышению концентрации носителей заряда в пленке, наряду со снижением ее интегрального светопропускания в видимом диапазоне длин волн. Наряду с этим, на графике холловской подвижности носителей заряда в пленке, как функции от парциального баланса напуска CF_4/O_2 , наблюдается экстремум, соответствующий минимально достигнутому поверхностному сопротивлению покрытия. Это связано с тем, что обеспечение, путем легирования SnO_2 фтором, слоя свободными носителями заряда нивелируется с ростом числа присутствующих в структуре покрытия атомов F, служащих по отношению к носителям заряда рассеивающими центрами [13]. Дальнейшие эксперименты проводились с использованием оптимальных с

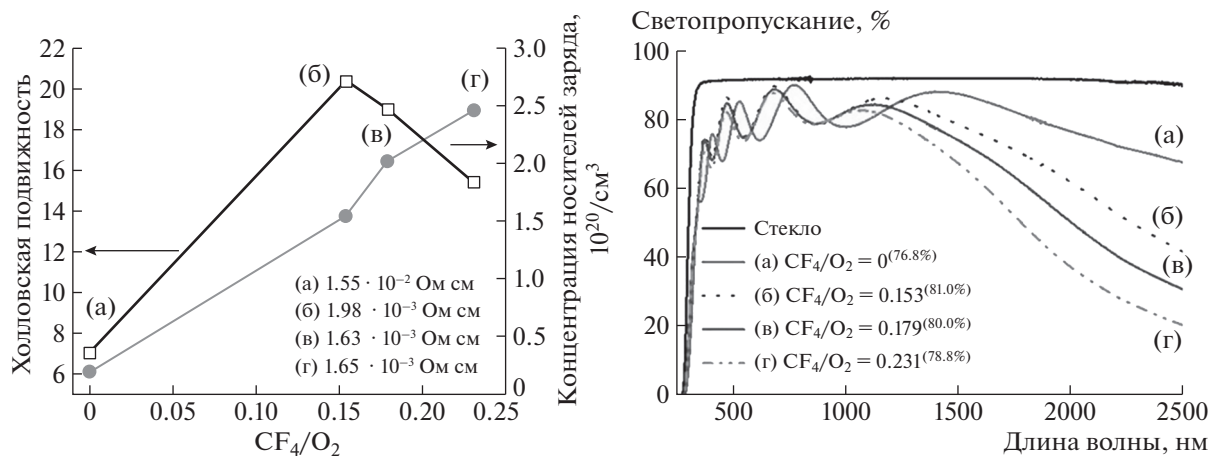


Рис. 1. Электрические качества (слева) и спектры пропускания (справа) FTO слоев, осажденных при различном парциальном составе реакционной газовой смеси.

точки зрения наименьшего поверхностного сопротивления образцов электродных покрытий, осаждавшихся при соотношении потоков напуска реакционных компонент газовой смеси CF₄/O₂ равном 0.179.

Совокупное сопротивление рассматриваемой электрохромной ячейки складывается из поверхностного сопротивления электродных слоев ($R_{\text{ТСО}}$), сопротивления электрохромного полимера ($R_{\text{полимер}}$), а также сопротивления на границе электрод/электролит (R_b), возникающего вследствие того, что под действием приложенной разности потенциалов катионные и анионные электрохромные компоненты, растворенные в полимере, упорядочиваются вдоль соответствующих электродов, создавая паразитный, экранирующий управляющее напряжение $U_{\text{упр}}$ потенциал [14]. Таким образом, из закона Ома для участка цепи, потенциал электрохимической реакции на границе электрод/электролит в некоторой точке на поверхности ЭХМ в некоторый момент времени в процессе переключения t может быть вычислен по формуле:

$$U_b = U_{\text{упр}} \frac{R_b(t)}{R_{\text{ТСО}} + R_b(t) + R_{\text{полимер}}}. \quad (1)$$

С помощью стационарных кривых годографа импеданса фиксировалось начало окрашивания и полное окрашивание ЭХМ, измерения проводились при управляющем напряжении 1 В. По полученным данным можно оценить полное сопротивление R ЭХМ разного размера (рис. 2а). Как и предполагалось исходя из изложенных выше соображений, полное регистрируемое сопротивление ЭХМ возрастает по мере окрашивания устройства (рис. 2б), что соответствует стадии интенсивной переориентации заряженных электрохромных компонент полимерного слоя относи-

тельно границы электрод/электролит, выходя на плато по мере достижения максимальной глубины тонирования (рис. 2в) — т.е. когда падение управляющего напряжения на возросшей компоненте сопротивления R_b превышает величину потенциала активации электрохромного материала. Было обнаружено, что как конечное ($R_{\text{кон}}$), так и начальное полное сопротивление $R_{\text{нач}}$ ЭХУ зависит от рабочей площади поверхности его электродных слоев (рис. 2г).

Было выдвинуто предположение, что это может быть связано с неоднородностью толщины, а также структурной целостности ТСО слоев (и, как следствие, величины их поверхностного сопротивления по поверхности подложки) в области проекции зоны наиболее интенсивного распыления мишени магнетронным разрядом (т.н. “рейстрек”) на подложку с уменьшением размера подложки — т.е. когда область проекции рейстрека занимает все большую долю общей площади поверхности подложки. Данные геометрические эффекты наблюдались, например, в [15–17], а также при осаждении SnO₂:F слоев на использовавшемся в описываемых экспериментах оборудовании (рис. 3а). Подобная, представленная на рис. 3а существенная неоднородность, визуально выявляемая на этапе тестирования электрохромных свойств собранного устройства, показывала, что в проекции области распыления магнетронного разряда на подложку нарушена кристаллическая структура или стехиометрия осажденного покрытия. Подобный эффект был вызван ионной бомбардировкой поверхности подложки в проекции максимальной плотности магнетронного разряда. Длина свободного пробега ионов в представленном случае (давление смеси рабочих газов в камере осаждения 10⁻³ торр) составляла ~30 см. Таким образом, данный эффект нивелировался

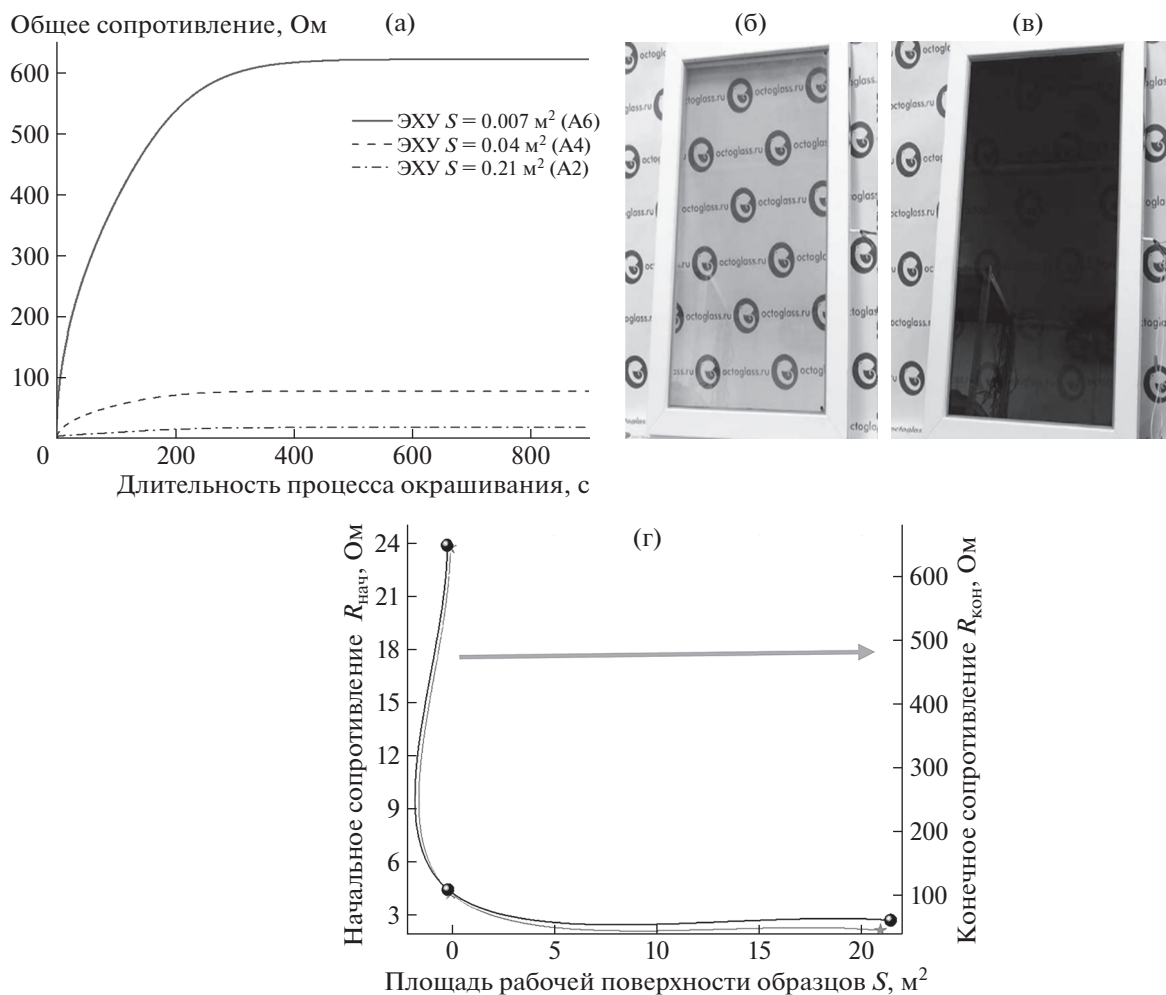


Рис. 2. Графики полного сопротивления R ЭХМ различных размеров, функции от длительности процесса окрашивания t (а); внешний вид образца ЭХМ формата А4 в ходе окрашивания (б) и состоянии полной тонировки (в); а также графики зависимости начального $R_{\text{нач}}$ и конечного $R_{\text{кон}}$ сопротивления ЭХМ в ходе окрашивания, как функции от площади рабочей поверхности образцов S (г).

повышением рабочего давления процесса осаждения, чтобы длина свободного пробега ионов была много меньше расстояния от мишени до подложки.

Данное предположение, однако, не было подтверждено в ходе дополнительной серии экспериментов. Так, при осаждении $\text{SnO}_2\text{:F}$ покрытий при расстоянии между мишенью и подложкой как 19 см (первоначальное расстояние), так и 35 см (увеличенное расстояние), поверхность покрытия в области проекции рейстрекка демонстрировала одинаковую однородность на СЭМ (рис. 3б–3г), а при увеличении давления смеси рабочего газа в камере с увеличением потока напуска Ag со 104 до 200 $\text{см}^3/\text{мин}$ наблюдалось повышение частоты дугообразования на модуле дугогашения источника питания разряда, и соответствующие нарушения целостности поверхности покрытия от попаданий паразитных дуговых разря-

дов (рис. 3г). Поверхностное сопротивление $\text{SnO}_2\text{:F}$ слоя, осажденного при 104 $\text{см}^3/\text{мин}$ потока напуска Ag при расположении подложки как на расстоянии 19 см, так и 35 см от мишени было неизменным для данного баланса потоков напуска CF_4 и O_2 и соответствовало значениям, указанным на рис. 1.

Для оценки вклада в полное сопротивление ЭХМ полимерной матрицей электролитического слоя, с помощью импедансной спектроскопии были сняты отдельные годографы ЭХ-матрицы, на основе которых было определено удельное сопротивление использовавшегося полимерного электролита $\rho_{\text{полим}}$ (рис. 4). Годограф импеданса представляет собой вытянутую полуокружность, которая переходит в т.н. “шпору” диффузионного импеданса Варбурга по мере увеличения частоты подаваемого спектрометром на образец тока. Такой вид годографов не описывается эквива-

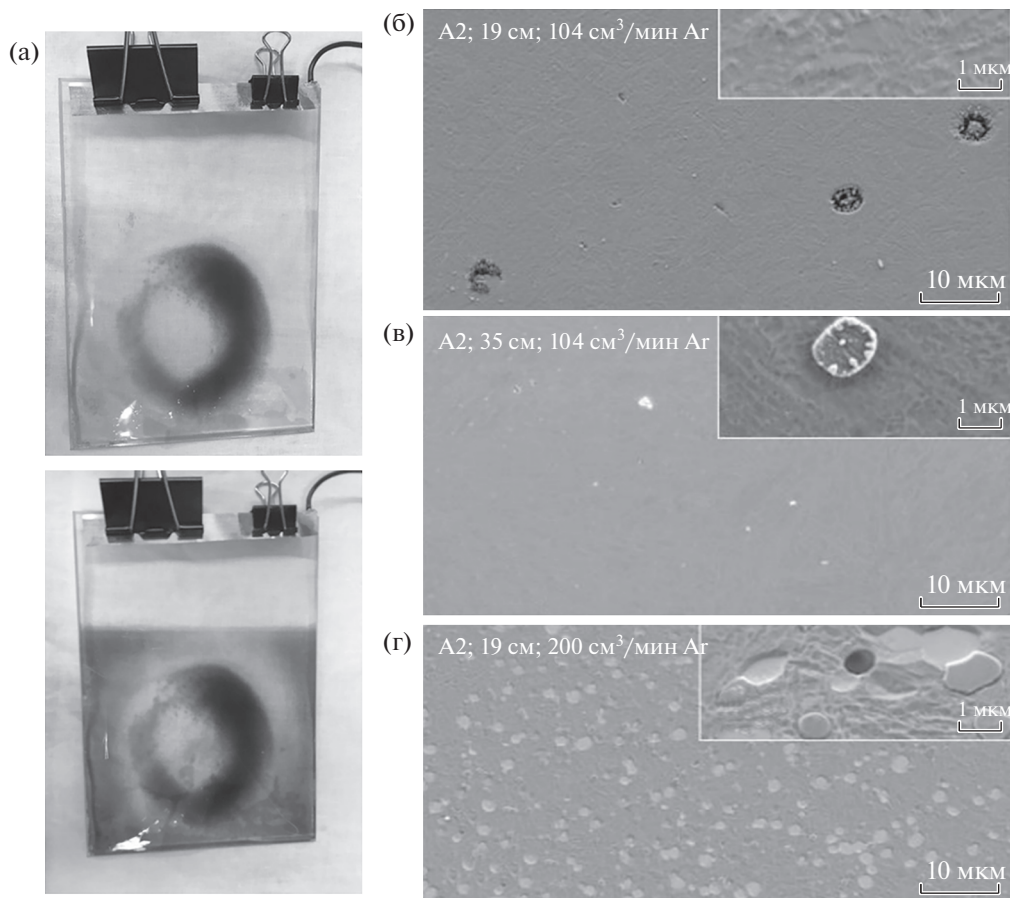


Рис. 3. Внешний вид дефектов окраски ЭХМ в области интенсивной ионной бомбардировки осаждаемых из плазмы магнетронного разряда слоев модуля (а); СЭМ поверхности FTO покрытия, осажденного на подложку формата А6 при различном ее расстоянии от мишени и потоке запуска Ag (б–г).

лентной схемой, начало годографа на оси действительной части импеданса является непосредственно полным сопротивлением образца полимера ($R_{\text{полим}}$) [18]. По полученному из годографа сопротивлению образца полимера известной площади было рассчитано удельное сопротивление использовавшегося в описываемой серии экспериментов полимера ЭХУ $\rho_{\text{полим}}$ составившее порядка 0.02 Ом м. На основании данного результата можно утверждать, что вклад в общее сопротивление ЭХМ от суммарного сопротивления $\text{SnO}_2\text{:F}$ электродов $R_{\text{ТСО}}$ и паразитного сопротивления на границе электрод/электролит R_b примерно в 200 раз превышает сопротивление толщи электролитического слоя для образцов всех использовавшихся в описываемой серии экспериментов размеров, в том числе, в начальный момент времени процесса их окрашивания. Так, для образца размером А6 ($S = 0.04 \text{ м}^2$), сопротивление полимерного слоя толщиной 800 мкм составит порядка $4 \cdot 10^{-4}$ Ом, в то время как полное сопротивление такого устройства, согласно результатам измерений, представленных на рис. 2г, в на-

чальный момент процессе его окрашивания составляло 5 Ом.

Таким образом, с учетом полученных прямым измерением данных об электрических свойствах осажденных из плазмы магнетронного разряда электродных слоев $\text{SnO}_2\text{:F}$, можно сделать вывод, что наиболее заметный вклад в совокупное сопротивление ЭХМ вносится омическими потерями на границе между электродным и электролитическим слоями, зависящими от накопленного в ходе окрашивания заряда на электроде, а также о присутствии на электродах носителей заряда в начальный момент времени, количество которых обратно пропорционально площади поверхности электродов.

Использование установленных зависимостей для расчета напряжения электрохимической реакции окрашивания на границе электрод/электролит электрохромных модулей согласно уравнению (1) позволили сократить длительность окрашивания исследуемых ЭХУ на 18% без снижения их циклической стабильности. Так, в случае подачи постоянного управляющего напряже-

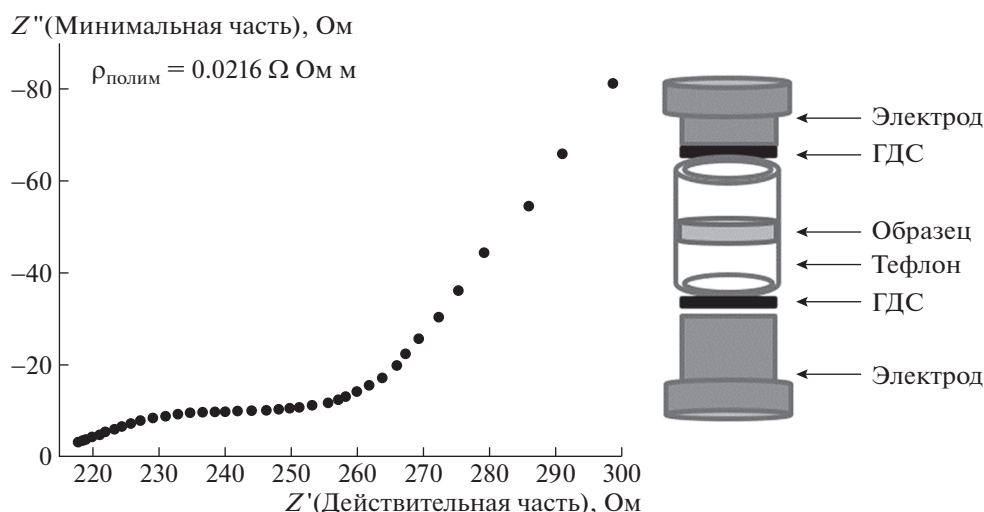


Рис. 4. Годографы импеданса образца ЭХ-матрицы (слева), и схема его расположения между электродами потенциостата с использованием углеродных ГДС (справа).

ния величиной 1 В, длительность полного окрашивания образцов (т.е., выхода на плато по графику полного сопротивления ЭХУ на рис. 2а) составляла 280 с, в то время как при подаче в каждый момент времени процесса окрашивания максимального безопасного, не превышающего величины окислительно-восстановительного потенциала, напряжения, контролируемого управляющим однокристалльным контроллером в соответствии с уравнением (1), длительность полного окрашивания устройства размером А4 составила 230 с.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе работы было выявлено, что наиболее заметный вклад в совокупное сопротивление ЭХУ вносится омическими потерями на границе между электродным и электролитическим слоями, зависящими от накопленного в ходе окрашивания заряда на электроде. Кроме того, предположение о присутствии на электродах носителей заряда в начальный момент времени, количество которых обратно пропорционально площади поверхности электродов, были подтверждены независимой импедансной спектроскопией электролитического слоя. Выявлено, что сопротивление на границе электродных пленок примерно в 200 раз превышает сопротивление толщи электролитического слоя. Установленные зависимости позволили сократить длительность окрашивания исследуемых ЭХУ на 18% без снижения их циклической стабильности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Somani P.R., Radhakrishnan S.* // *Mat. Chem. Phys.* 2002. V. 77. P. 117–133.
2. *Mehmood A., Long X., Haidry A.A., Zhang X.* // *Ceram. Int.* 2020. V. 46 (15). P. 23295–23313.
3. *Raugh R.D.* // *Electrochim. Acta.* 1999. V. 44 (18). P. 3165–3176.
4. *Granqvist C.G.* *Handbook of Inorganic Electrochromic Materials.* 1995. Amsterdam: Elsevier. P. 114–136.
5. *Louloudakis D. et al.* // *Electrochim. Acta.* 2021. V. 376. P. 138049.
6. *Bange K., Gambke T.* // *Adv. Mater.* 1990. V. 2. P. 10–16.
7. *Ellmer K.* // *J. Appl. Phys.* 2000. V. 33. P. 17–32.
8. *Mortimer R.J.* // *Chem. Soc. Rev.* 1997. V. 26. P. 147–156.
9. *Gu H., Lin K., Liu X., et al.* // *J. Solid State Electrochem.* 2018. V. 22. P. 599–611.
10. *Welsh T.A., Draper E.R.* // *RSC Adv.* 2021. V. 11. P. 5245–5264.
11. *Ah C.S. et al.* // *Bull. Korean Chem. Soc.* 2015. V. 36. P. 548–552.
12. *Xu T., Walter E., Agrawal A., et al.* // *Nat. Commun.* 2016. V. 7. 10479.
13. *Hudaya C., Park J.H., Lee J.K.* // *Nanoscale Res. Lett.* 2012. V. 7. P. 17.
14. *Liu L., Du K., et al.* // *Nano Energy.* 2019. V. 62. P. 46–54.
15. *Evrard M., Aurelien B., Lucas S.* // *Surf. Coat. Technol.* 2019. V. 378. P. 125070.
16. *Lin J. et al.* // *Surf. Coat. Technol.* 2010. V. 204 (14). P. 2230–2239.
17. *Depla D. et al.* // *Thin Solid Films.* 2019. V. 688. P. 202–226.
18. *Barsoukov E., Ross Macdonald J.* *Impedance Spectroscopy. Theory, Experiment, and Applications.* 2005. New York: Wiley. P. 38–41.

OHMIC Losses on Magnetron-Sputtered PVD Thin-Film TCO Electrodes of the Electrochromic Modules During Their Tinting

K. S. Novikova^{1, *}, V. V. Kravchenko^{1, **}, D. P. Knyazhev¹, D. D. Bernt^{1, 2}, and A. A. Pisarev²

¹*Octoglass" JSC, Moscow, 123112 Russia*

²*National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia*

**e-mail: k.novikova@octoglass.ru,*

***e-mail: v.kravchenko@octoglass.ru*

Received June 29, 2022; revised July 5, 2022; accepted July 11, 2022

Abstract—The processes influencing on the ohmic losses at the border between the reactively magnetron-sputter deposited thin film oxide FTO electrodes and the polymer electrolyte within the cell of an electrochromic device are considered. The function of the registered full ohmic resistance of the device from the total electrical charge collected during the tinting process is established. The influence of the surface area of the device on the contribution to its total ohmic resistance from the resistance of directly the thin-film oxide electrodes is estimated. The assumption about the presence of a random number of ECD charge carriers on the surface of its electrodes at the initial moment of the coloring process, which also contributes to the initial ohmic resistance of the device, was confirmed by independent impedance spectroscopy of the electrolytic layer.

Keywords: transparent conductive oxides, fluorine doped tin oxide, electrochromic devices, reactive magnetron sputtering, impedance spectroscopy

РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ

УДК 614.876

ДОЗА ОБЛУЧЕНИЯ ПЕРСОНАЛА В 2020 г.

© 2022 г. В. В. Костерев^а, *, А. Г. Цовьянов^б, А. Г. Сивенков^б, В. Е. Журавлева^б

^аНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия

^бГНЦ РФ Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна ФМБА России, Москва, 123098 Россия

*E-mail: vvkosterev@mephi.ru

Поступила в редакцию 21.01.2022 г.

После доработки 31.07.2022 г.

Принята к публикации 02.08.2022 г.

Представлена информация о профессиональном внешнем и внутреннем облучении в 2020 г. персонала организаций, включая АЭС, на территориях, обслуживаемых ФМБА России. Приведено количественное распределение 532 объектов, эксплуатирующих источники ионизирующего излучения, по ведомственной принадлежности и виду деятельности. Доза облучения персонала сгруппирована по ведомственной принадлежности объектов. Рассчитаны параметры дозовых распределений: мода, медиана, среднее, среднее квадратичное отклонение, квантиль и коэффициент вариации. Представлено распределение численности персонала, работающего с источниками ионизирующего излучения или подвергающегося воздействию ионизирующих излучений, по дозовым интервалам учета индивидуальных доз облучения на объектах разной ведомственной принадлежности. Приведено значение коллективной дозы с учетом вклада прикомандированного персонала, а также значение средней индивидуальной дозы для АЭС, объединенных по типу реакторов. Проведен анализ доз облучения в зависимости от профессии. Отмечено большое количество нулевой индивидуальной дозы облучения на АЭС. Сделан вывод об удовлетворительной радиационной обстановке в организациях, обслуживаемых Федеральным медико-биологическим агентством. Проведено сравнение с дозами облучения персонала в 2013 и 2017 гг. и с данными для других стран: Франции, США, Германии, Великобритании и Китая.

Ключевые слова: доза облучения, индивидуальная доза, коллективная доза, параметры дозовых распределений, персонал

DOI: 10.56304/S2079562922030265

ВВЕДЕНИЕ

Единая государственная система контроля и учета индивидуальных доз облучения граждан (ЕСКИД) создана в целях реализации статьи 18 Федерального закона Российской Федерации от 9 января 1996 г. № 3-ФЗ “О радиационной безопасности населения”, а также во исполнение Постановления Правительства Российской Федерации от 16 июня 1997 г. № 718 “О порядке создания единой государственной системы контроля и учета индивидуальных доз облучения граждан”. Составной частью ЕСКИД является Федеральный банк данных (ФБД) по индивидуальным дозам облучения персонала организаций и населения на территориях, обслуживаемых ФМБА России.

Основными документами, характеризующими состояние радиационной безопасности организаций и территорий, являются радиационно-гигиенические паспорта организаций и территорий (РГП). Радиационно-гигиеническая паспортизация функционирует во исполнение Постановления Правительства Российской Федерации от

28 января 1997 г. № 93 “О порядке разработки радиационно-гигиенических паспортов организаций и территорий”. Одним из основных показателей оценки радиационной безопасности являются индивидуальные и коллективные эффективные дозы облучения.

Исходным материалом для анализа послужили поступившие в ФГБУ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России годовые формы федерального государственного статистического наблюдения, утвержденные постановлениями Федеральной службы государственной статистики Российской Федерации (Росстата) от 18.11.2005 г. № 84: № 1-ДОЗ “Сведения о дозах облучения лиц из персонала в условиях нормальной эксплуатации техногенных источников ионизирующих излучений”.

ДОЗА ОБЛУЧЕНИЯ ПЕРСОНАЛА ОРГАНИЗАЦИЙ

Приведены данные о дозах облучения персонала в нормальных условиях эксплуатации техно-

генных источников. Они получены на основе анализа и обобщения информации за 2020 г. из радиационно-гигиенических паспортов предприятий и территорий, обслуживаемых ФМБА России. Данные о дозах облучения персонала в 2013 и 2017 гг. приведены в [1, 2] соответственно.

Количественное распределение 532 объектов, эксплуатирующих источники ионизирующего излучения, по ведомственной принадлежности и виду деятельности приведены в табл. 1. Для каждой группы объектов показано распределение составляющего их числа по категории радиационной опасности. В распределении по ведомственной принадлежности выделено 236 объектов медицинского профиля, в большинстве подчиненных ФМБА России, 137 организаций, подведомственных Госкорпорации “Росатом”, 1 – Министерству обороны, 12 – Объединенной судостроительной корпорации (ОСК), 31 – Госкорпорации “Роскосмос”, 7 – РАН и 133 – прочих, которые относятся к другим ведомствам или не имеют ведомственного подчинения.

Доза облучения персонала сгруппирована по ведомственной принадлежности объектов (табл. 2). Средняя эффективная доза персонала группы А за 2020 г. составила 1.42 мЗв, группы Б – 0.09 мЗв. Наибольшая средняя эффективная годовая доза облучения персонала группы А зарегистрирована в Госкорпорации “Росатом” 1.53 мЗв (1.57 мЗв в 2016 г., 1.59 мЗв в 2017 г.), группы Б – в медицинских организациях 0.76 мЗв (0.77 мЗв в 2016 г., 1.01 мЗв в 2017 г.). Суммарная коллективная доза облучения персонала Госкорпорации “Росатом” составила 96.80 чел-Зв (109.18 чел-Зв в 2016 г., 111.02 чел-Зв в 2017 г.), медицинских учреждений – 3.04 чел-Зв (2.9 чел-Зв в 2016 г.).

На предприятиях, отнесенных к категории “прочие”, средняя эффективная годовая доза облучения персонала составила для группы А 1.02 мЗв (1.24 мЗв в 2016 г., 1.23 мЗв в 2017 г.), группы Б – 0.18 мЗв (0.27 мЗв в 2016 г., 0.15 мЗв в 2017 г.). Суммарная коллективная доза облучения персонала предприятий категории “прочие” – 6.92 чел-Зв (9.23 чел-Зв в 2016 г., 8.13 чел-Зв в 2017 г.).

На предприятиях Объединенной судостроительной корпорации средняя эффективная годовая доза облучения для персонала группы А составила 0.98 мЗв (1.28 мЗв в 2016 г., 1.35 мЗв в 2017 г.), группы Б – 0.06 мЗв (0.08 мЗв в 2016 г., 0.05 мЗв в 2017 г.), суммарная коллективная – 7.63 чел-Зв (9.17 чел-Зв в 2016 г., 8.33 чел-Зв в 2017 г.).

В табл. 3 представлено распределение численности персонала, работающего с источниками ионизирующего излучения или подвергающегося воздействию ионизирующего излучения, по дозовым интервалам учета индивидуальной дозы облучения на объектах разной ведомственной принадлежности.

Общая численность персонала составила 156334 человек, что на 2704 меньше, чем в 2017 г., при этом численность персонала категории А составила 78 754 чел., что на 2321 чел. меньше, чем в 2017 г., категории Б – 77580, или на 383 меньше, чем в 2017 г. Доза облучения большей части персонала 124446 чел. включена в диапазон 0–1 мЗв/год, 17213 чел. в 1–2 мЗв/год, 9972 чел. в 2–5 мЗв/год.

Зарегистрирован один случай облучения работника из персонала группы А выше 20, но менее 50 мЗв/год на предприятии Объединенной судостроительной корпорации. Превышения годовой эффективной дозы 50 мЗв в 2020 г. не зафиксировано. Аварий и происшествий при работе с ядерными материалами и радиоактивными веществами, выходящими за рамки локальных, классифицированных по Международной шкале ядерных событий ИНЕС (INES) выше уровня “0” в 2020 г. не было.

Анализ табл. 4 выявил большое количество нулевой индивидуальной дозы облучения на АЭС: 1063 на Балаковской – 66%, 1428 на Белоярской – 56%, 1233 на Ростовской – 42%, 1006 на Калининской – 53%, 1000 на Нововоронежской – 51%. На остальных АЭС процент нулевой индивидуальной дозы облучения ниже и колеблется от 0 на Билибинской до 35% на Кольской АЭС. При числе нулевых значений больше 50%, медиана распределения индивидуальной дозы равняется нулю. Соответственно на Балаковской, Белоярской, Калининской и Нововоронежской АЭС медиана равна нулю. Мода, т.е. наиболее часто встречающаяся доза персонала всех АЭС, кроме Билибинской, также равна нулю. Среднее значение дозы, как правило, превышает медиану больше, чем в 2 раза, причем на Кольской АЭС это превышение максимально и равно 10. Среднеквадратичное отклонение дозового распределения персонала минимально на АЭС “Академик Ломоносов” и равно 0.21, максимально на Билибинской АЭС – 4.33.

При исключении из анализа нулевой дозы средняя доза возрастет пропорционально отброшенному числу доз. Одновременно немного увеличивается 95%-ый квантиль, но снижается коэффициент вариации. Последнее указывает на большую однородность выборки, сформированной без нулевых значений.

При расчете статистических характеристик распределения индивидуальной годовой эффективной дозы внешнего и внутреннего облучения персонала с учетом нулевой дозы было проверено соответствие данных нормальному закону распределения случайных величин. Анализ позволяет сделать вывод о несоответствии распределения доз нормальному закону: в сформированных выборках как медиана, так и мода значительно отли-

Таблица 1. Распределение объектов, эксплуатирующих источники ионизирующих излучений, по ведомственной принадлежности, виду деятельности и категории опасности

Виды организаций	Число организаций данного вида				
	всего	в том числе по категориям			
		I	II	III	IV
Госкорпорация “Росатом”					
Атомные электростанции	11	10	1		
Геологоразведочные и добывающие	4			3	1
Медучреждения	1				1
Научные и учебные	20	4		7	9
Промышленные	44	5	1	7	31
Пункты захоронения РАО	23	2	3	17	1
Прочие особо радиационноопасные	13	1	1	9	2
Прочие	21		1	2	18
ВСЕГО	137	22	7	45	63
Медицинские					
Медучреждения	236	1			235
Научные и учебные	4			1	3
Промышленные	1				1
Прочие	3				3
ВСЕГО	244	1		1	242
РАН					
Научные и учебные	6			1	5
Промышленные	1				1
ВСЕГО	7			1	6
ОСК					
Промышленные	12	5		4	3
ВСЕГО	12	5		4	3
Роскосмос					
Научные и учебные	5				5
Промышленные	15			2	13
Прочие	1				1
ВСЕГО	21			2	19
Прочие					
Геологоразведочные и добывающие	1				1
Медучреждения	3				3
Научные и учебные	22	1	3	3	15
Промышленные	53	1		4	48
Таможенные	1				1
Прочие особо радиационноопасные	2			2	
Прочие	29				29
ВСЕГО	111	2	3	9	97
ИТОГО	532	30	10	62	430

Таблица 2. Эффективные годовые дозы облучения персонала организаций разной ведомственной принадлежности на территории, обслуживаемой ФМБА России

Ведомственная принадлежность	Эффективные годовые дозы персонала					
	Средняя, мЗв			Коллективная, чел-Зв		
	А	Б	всего	А	Б	всего
Госкорпорация “Росатом”	1.53	0.14	1.10	96.80	3.87	100.68
Медицинские	0.93	0.76	0.90	2.55	0.41	2.96
РАН	0.58	0.03	0.52	0.16	0.00	0.16
ОСК	0.98	0.06	0.15	5.07	2.55	7.63
Роскосмос	0.86	0.37	0.74	0.39	0.05	0.44
прочие	1.02	0.18	0.77	6.46	0.46	6.92
ВСЕГО	1.42	0.09	0.76	111.43	7.35	118.78

Таблица 3. Распределение персонала с учетом индивидуальной дозы облучения

Группа персонала	Численность, чел.	Численность персонала (чел.), имеющего индивидуальную дозу в диапазоне, мЗв/год						
		0—1	1—2	2—5	5—12.5	12.5—20	20—50	>50
Госкорпорация “Росатом”								
Группа А	63337	36452	13516	9062	3664	643	0	0
Группа Б	28400	27872	483	45	0	0	0	0
ВСЕГО	91737	64324	13999	9107	3664	643	0	0
Медицинские								
Группа А	2781	1831	812	104	29	5	0	0
Группа Б	554	396	151	7	0	0	0	0
ВСЕГО	3335	2227	963	111	29	5	0	0
РАН								
Группа А	271	246	20	5	0	0	0	0
Группа Б	37	37	0	0	0	0	0	0
ВСЕГО	308	283	20	5	0	0	0	0
ОСК								
Группа А	5153	3651	1124	248	112	17	1	0
Группа Б	45811	45811	0	0	0	0	0	0
ВСЕГО	50964	49462	1124	248	112	17	1	0
Роскосмос								
Группа А	452	278	168	2	4	0	0	0
Группа Б	138	136	2	0	0	0	0	0
ВСЕГО	590	414	170	2	4	0	0	0
Прочие								
Группа А	6760	5118	916	498	192	36	0	0
Группа Б	2640	2618	21	1	0	0	0	0
ВСЕГО	9400	7736	937	499	192	36	0	0
Все организации								
Группа А	78754	47576	16566	9919	4001	701	1	
Группа Б	77580	76870	657	53	0	0	0	
Итого	156334	124446	17213	9972	4001	701	1	

Таблица 4. Внешнее и внутреннее облучение персонала АЭС

АЭС	Численность персонала, чел.	Число нулевых значений доз	Среднее, мЗв	Стандартное отклонение, мЗв	Медиана, мЗв	Мода, мЗв	Квантиль, мЗв		Коэффициент вариации, %
							5%	95%	
С учетом нулевой индивидуальной дозы									
Балаковская	1609	1063	0.38	1.11	0	0	0	2.2	296.81
Белоярская	2549	1428	0.52	1.5	0	0	0	3.73	287.74
Билибинская	682	0	3.71	4.33	1.55	0.1	0.01	13.8	116.72
Калининская	1884	1006	0.63	1.79	0	0	0	3.55	283.92
Кольская	1999	697	1	2.07	0.1	0	0	5.79	206.49
Курская	3049	127	1.5	2.39	0.63	0	0.03	6.71	159.14
Ленинградская	3555	580	1.98	3.03	0.89	0	0	9.08	152.59
Нововоронежская	1975	1000	0.6	1.64	0	0	0	3.1	275.87
“Академик Ломоносов”	255	52	0.24	0.21	0.17	0	0	0.63	88.33
Ростовская	2930	1233	0.31	0.81	0.07	0	0	1.62	261.57
Смоленская	2575	52	1.75	1.89	1.11	0	0.22	5.82	108.17
Всего	23062	7238	1.15	1.89	0.41	0.01	0.02	5.09	203.4
Без учета нулевой индивидуальной дозы									
Балаковская	546	—	1.11	1.69	0.4	0.1	0.1	5.4	152.68
Белоярская	1121	—	1.18	2.08	0.24	0.02	0.01	5.55	175.56
Билибинская	682	—	3.71	4.33	1.55	0.1	0.01	13.8	116.72
Калининская	878	—	1.35	2.43	0.37	0.05	0.03	6.59	179.57
Кольская	1302	—	1.54	2.4	0.41	0.02	0.02	7	155.85
Курская	2922	—	1.57	2.42	0.66	0.44	0.13	6.89	154.45
Ленинградская	2975	—	2.37	3.17	1.16	0.06	0.09	10.41	133.62
Нововоронежская	975	—	1.21	2.17	0.4	0.1	0.1	5.4	180.34
“Академик Ломоносов”	203	—	0.3	0.19	0.28	0.1	0.06	0.65	64.56
Ростовская	1697	—	0.53	1.01	0.14	0.07	0.06	2.75	188.22
Смоленская	2523	—	1.79	1.9	1.14	0.53	0.31	5.9	106.13
Всего	15824	—	1.51	2.16	0.61	0.14	0.08	6.39	146.15

чаются от среднего значения, что свидетельствует о существенной несимметричности распределения.

Наибольшая коллективная доза 7.06 чел-Зв зарегистрирована на Ленинградской АЭС, наименьшая 0.06 чел-Зв на ПАТЭС Академик Ломоносов (табл. 5). Вклад прикомандированного персонала 3606 чел., находящегося на индивидуальном дозиметрическом контроле, в общую численность персонала АЭС 23 062 чел. составил 16%; а вклад в общую коллективную дозу 25.93 чел-Зв составил 2.42 чел-Зв (9.3%).

В табл. 6 АЭС, объединенные по типу реакторов, расположены в порядке возрастания средней дозы облучения персонала — минимальное 0.24 мЗв на ПАТЭС “Академик Ломоносов”, максимальное 3.71 мЗв на Билибинской АЭС. Медианные значения и тем более моды дозового распределения, как правило, существенно ниже.

В 2020 г. наибольшие средние дозы персонала группы А для 25 наиболее распространенных профессий и должностей наблюдались у дефектоскопистов рентгено-, гамма-графирования — 3.23 мЗв и слесарей по ремонту реакторно-турбинного оборудования — 2.94 мЗв (табл. 7). Для остальных специальностей из списка характерны средние дозы в 2–4 раза меньше. Максимальные дозы зарегистрированы у дефектоскопистов рентгено-, гаммаграфирования — 26.38 мЗв и слесарей по контрольно-измерительным приборам и автоматике — 19.76 мЗв. Близкие к последнему значению максимальные дозы зарегистрированы у слесарей-ремонтников, инженеров-технологов, электро-газосварщиков, рентген лаборантов и специалистов.

Сравнение с 2017 г. показывает, что среднее профессиональное внешнее и внутреннее облучение на АЭС, объединенных по типу реакторов,

Таблица 5. Численность и коллективная доза персонала АЭС

АЭС	Численность персонала, чел.	Численность прикомандированного персонала, чел	Общая коллективная доза, чел-Зв	Коллективная доза прикомандированного персонала, чел-Зв
Балаковская	1609	7	0.59	0
Белоярская	2549	967	1.32	0.19
Билибинская	682	226	2.53	0.83
Калининская	1884	149	1.18	0.03
Кольская	1999	850	2.01	0.87
Курская	3049	7	4.58	0.02
Ленинградская	3555	0	7.06	0
Нововоронежская	1975	8	1.18	0.01
ПАТЭС	255	58	0.06	0.01
Ростовская	2930	1310	0.91	0.41
Смоленская	2575	24	4.51	0.04
Всего	23062	3606	25.93	2.42

Таблица 6. Внешнее и внутреннее облучение персонала АЭС по типу реакторов с учетом нулевой индивидуальной дозы

Тип реактора	Численность персонала, чел.	Число нулевых значений дозы	Мода, мЗв	Медиана, мЗв	Среднее, мЗв	Стандартное отклонение, мЗв	Квантиль, мЗв		Коэффициент вариации, %
							5%	95%	
КЛТ (ПАТЭС “Академик Ломоносов”)	255	52		0.17	0.24	0.21		0.63	88.33
БН (Белоярская АЭС)	2549	1428	0	0	0.52	1.5	0	3.73	287.74
ВВЭР (Балаковская. Калининская. Кольская. Нововоронежская. Ростовская АЭС)	10397	4999	0	0.04	0.57	1.53	0	3.3	271.38
РБМК (Смоленская. Ленинградская. Курская АЭС)	9179	759	0	0.85	1.76	2.55	0	7.16	144.93
ЭГП (Билибинская АЭС)	682	0	0.1	1.55	3.71	4.33	0.01	13.8	116.72
Всего	23062	7238	0.02	0.52	1.36	2.02	0.01	5.72	181.82

с учетом нулевой индивидуальной дозы в 2020 г. уменьшилось с 1.75 до 1.36 мЗв. Особенно заметное уменьшение отмечено на АЭС с РБМК — с 2.11 до 1.76 мЗв при росте численности персонала, состоящего на индивидуальном дозиметрическом контроле, с 8629 до 9179 чел. Аналогичное уменьшение наблюдается и для медианы дозового распределения с 0.98 до 0.75 мЗв. Исключение составляет Белоярская АЭС — для нее характерно увеличение среднего значения с 0.44 до 0.52 мЗв при уменьшении численности персонала, состоящего на индивидуальном дозиметрическом контроле, с 3008 (число значений нулевой дозы равно 1736) до 2549 (число значений нулевой дозы равно 1428). На АЭС с ВВЭР среднее значение дозы

практически не изменилось — с 0.58 до 0.57 мЗв при уменьшении численности персонала с 11 711 чел. до 10 397 чел. Для Билибинской АЭС аналогичное уменьшение: с 3.86 мЗв (694 чел.) до 3.71 мЗв (682 чел.).

В результате можно сделать вывод об удовлетворительной радиационной обстановке в организациях, обслуживаемых Федеральным медико-биологическим агентством.

При проведении сравнения полученных результатов для РФ с данными для других стран необходимо учитывать различные факторы: в каждой стране действует своя структура учета и систематизации доз и, как правило, неизвестна методика обработки данных. Даже в пределах од-

Таблица 7. Средние индивидуальные годовые дозы облучения персонала группы А для 25 наиболее распространенных профессий и должностей в 2020 г

Профессия/должность	Количество, чел.	Средняя доза, мЗв/год	Макс. доза, мЗв/год
Инженер	7721	0.72	18.35
Слесарь по ремонту реакторно-турбинного оборудования	3978	2.94	15.41
Слесарь-ремонтник	2572	1.97	19.44
Дезактиваторщик	2232	1.18	16.10
Инженер-технолог	2036	1.18	19.36
Электромонтер по ремонту и обслуживанию электрооборудования	1900	1.11	12.62
Дозиметрист	1559	1.75	16.08
Электрослесарь по ремонту и обслуживанию автоматики и средств измерений электростанций	1424	0.90	13.49
Слесарь по контрольно-измерительным приборам и автоматике	1308	1.61	19.76
Мастер	1261	1.46	14.80
Уборщик производственных и служебных помещений	1228	0.86	8.93
Дефектоскопист рентгено-гаммаграфирования	1113	3.23	26.38
Научный сотрудник (в области физики и астрономии)	1088	0.54	9.01
Инженер-исследователь	1084	0.70	17.51
Оператор реакторного отделения	995	1.69	14.80
Электрогазосварщик	989	1.66	19.39
Водитель автомобиля	976	0.83	12.87
Слесарь-монтажник судовой	972	0.76	7.64
Рентгенолаборант	967	0.87	19.15
Электрослесарь по обслуживанию автоматики и средств измерений электростанций	931	0.65	8.70
Лаборант химического анализа	916	0.80	8.58
Начальник смены (в промышленности)	827	0.87	10.90
Специалист	790	0.57	19.22
Маляр	768	0.68	8.05
Врач-специалист	762	0.80	15.85

ной страны результаты одного года не всегда напрямую сопоставимы с результатами других лет. Тем не менее некоторые сравнения провести можно. Например, наибольшие средние дозы персонала АЭС Франции [3] регистрируются у тех, кто отвечает за установку и демонтаж теплоизоляции (2.6–3.2 мЗв) и сварщиков (1.7–2.1 мЗв). Изменения соответствуют данным, полученным в 2013–2016 гг. Видно, что наибольшие средние дозы персонала АЭС Франции близки к аналогичным значениям для Российской Федерации.

В 2020 г. анализ доз за 2019 г. во Франции осуществлялся с использованием новой методологии [4]. В этой связи средняя индивидуальная доза групп А и Б приведена только суммарно для всей контролируемой когорты, включая медицинское облучение – 1.20 и 0.85 мЗв для 395040 и 369712 работников, соответственно. Что касается профессионального облучения работников гражд-

данской сферы атомной отрасли, констатируется только, что превышения 20 мЗв/год для 77374 работников не было (четыре случая было зарегистрировано в области медицинского применения ионизирующего излучения и один в частных надзорных организациях). В 2019 г. коллективная доза работников группы А всей контролируемой когорты достигла 112.31 чел-Зв, значение, которое увеличилось почти на 8% по сравнению с 2018 г., в то время как средняя индивидуальная доза увеличилась на 7%. Это увеличение в первую очередь связано с увеличением объема работ по техническому обслуживанию в ядерном секторе и увеличением доз, получаемых летными экипажами.

Для организаций министерства энергетики США средняя индивидуальная доза снизилась на 20 процентов с 0.74 мЗв в 2015 г. до 0.59 мЗв в 2016 г. [5]. Причем, девяносто девять процентов всех обследованных лиц имели дозы менее 2.5 мЗв. Ни

один человек не превысил нормативный лимит 20 мЗв за период с 2012 по 2016 гг.

В качестве примера различной ситуации на разных АЭС Германии в 2009 г. среднегодовая индивидуальная эффективная доза для контролируемого персонала варьировалась от 0.46 до 1.78 мЗв [6]. Доля персонала с дозами больше 1 мЗв показывает общую тенденцию к снижению. В случае реакторов Konvoi только несколько процентов доз превышает значение 1 мЗв. Сравнение данных немецких АЭС при выводе их из эксплуатации с данными эксплуатационной фазы показывает, что, как правило, средние годовые эффективные дозы контролируемого персонала составляют от 10 до 20% эксплуатационной дозы, но это соотношение зависит от конкретной АЭС.

Средние профессиональные дозы в Соединенном Королевстве [7] уменьшались во второй половине 20-го века. Например, сообщалось о среднегодовых дозах 4 мЗв или более в период 1955–1974 гг. по сравнению с 1.6 мЗв в 1985–1989 гг. и 0.9 мЗв в 1990–1994 гг. По оценкам, средняя годовая доза составила 1.4 мЗв среди работников с годовой зарегистрированной дозой не менее 0.1 мЗв в течение 1986–2005 гг.

Что касается профессионального облучения в Китае [8], отмечается, что уровень охвата индивидуальным мониторингом (для всех когорт) постепенно увеличивался и в 2013 г. достиг более 80 процентов, с некоторой разницей по отраслям и районам. Средняя доза облучения работников снизилась с 2 мЗв в 1980-х гг. до 1 мЗв в 1990-х гг., а затем снижалась до 0.5 мЗв в г. в 2010-х гг., что в основном связано с техническими усовершенствованиями оборудования прежде всего для медицинского использования ионизирующего излучения.

В публикации [9] приводится оценка динамики средних годовых доз для действующих коммерческих реакторов: от 3.1 мЗв в 1993 г. с ростом до 0.32 мЗв в 1994 и 1995 гг. с дальнейшим уменьшением до 2.4 мЗв в 2002 г.

Таким образом, общей мировой тенденцией является снижение индивидуальных доз облучения, при том, что конкретные значения доз не сильно различаются в разных странах в более-менее схожих условиях облучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ приведенных данных позволяет констатировать удовлетворительную, в целом, радиационную обстановку в 2020 г. на территориях, обслуживаемых ФМБА России. Ни в одном из контролируемых регионов не наблюдалось превышения предельно допустимых уровней радиоактивного загрязнения воздуха и воды открытых водоёмов в санитарно-защитной зоне и зоне наблюдения.

Дозы облучения персонала, по большей части существенно ниже предельно допустимых, причем превышения этих доз не зафиксировано.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Kosterev V.V., Tsov'yanov A.G., Sivenkov A.G., Bragin Yu.N. // *At. Energy*. 2016. V. 120 (2). P. 148.
2. Kosterev V.V., Tsov'yanov A.G., Sivenkov A.G., Zhuravleva V.E. // *At. Energy*. 2020. V. 127 (6). P. 382.
3. ASN Report on the State of Nuclear Safety and Radiation Protection in France in 2016. 2016. Montrouge. France.
4. ASN Report on the State of Nuclear Safety and Radiation Protection in France in 2020. 2020. Montrouge. France.
5. DOE 2016 Occupational Radiation Exposure. 2017. Oak Ridge.
6. Strub E., Schmidt C., Kaulard J. Occupational Radiation Exposure of Workers in German NPPs. 2010.
7. Muirhead C.R., Haylock R. // *Brit. J. Cancer*. 2012. V. 107. P. 1660.
8. Occupational Exposure in China. <https://www.researchgate.net/publication/306002907>.
9. Occupational Radiation Exposure at Commercial Nuclear Power Reactors and other Facilities. Annual Report NUREG-0713. 2003. Nuclear Regulatory Commission. V. 24.

Personnel Radiation Dose in 2020

V. V. Kosterev¹ *, A. G. Tsovyanov², A. G. Sivenkov², and V. E. Zhuravleva²

¹ National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

² Burnasyan Federal Medical Biophysical Centre of Federal Medical Biological Agency of Russia (FMBA), Moscow, 123098 Russia

*e-mail: vykosterev@mephi.ru

Received July 21, 2022; revised July 31, 2022; accepted August 2, 2022

Abstract—Information is provided on professional external and internal irradiation in 2020 of personnel of organizations, including nuclear power plants, in the territories serviced by the FMBA of Russia. The quantitative distribution of 532 objects operating ionizing radiation sources by departmental affiliation and type of activity is given. The radiation dose of the personnel is grouped according to the departmental affiliation of

the objects. The parameters of dose distributions are calculated: mode, median, mean, mean square deviation, quantile and coefficient of variation. The distribution of the number of personnel working with ionizing radiation sources is presented according to the dose intervals for taking into account individual radiation doses at facilities of different departmental affiliation. The value of the collective dose is given, taking into account the contribution of seconded personnel, as well as the value of the average individual dose for nuclear power plants united by reactor type. The analysis of radiation doses depending on the profession was carried out. A large number of zero individual radiation doses at nuclear power plants were noted. The conclusion is made about the satisfactory radiation situation in organizations serviced by the Federal Biomedical Agency. A comparison was made with the radiation doses of personnel in 2013 and 2017 and with data for other countries: France, USA, Germany, Great Britain and China.

Keywords: radiation dose, individual dose, collective dose, parameters of dose distributions, personnel

УДК 661.887.272

БИОРАСПРЕДЕЛЕНИЕ ^{213}Bi –МЕТАЛЛОТИОНЕИНА И ^{213}Bi –IgG В ОРГАНИЗМЕ ИНТАКТНЫХ МЫШЕЙ

© 2022 г. В. М. Петриев^{a, b, *}, В. К. Тищенко^a, П. В. Шегай^c, С. А. Иванов^{a, d}, А. Д. Каприн^{c, d}

^aМедицинский радиологический научный центр им. А. Ф. Цыба – филиал Национального медицинского исследовательского центра радиологии Минздрава РФ, Калужская область, Обнинск, 249031 Россия

^bНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия

^c Национальный медицинский исследовательский центр радиологии Минздрава РФ, Калужская область, Обнинск, 249036 Россия

^dРоссийский университет дружбы народов, Москва, 117198 Россия

*E-mail: vikshir82@mail.ru

Поступила в редакцию 31.05.2022 г.

После доработки 31.05.2022 г.

Принята к публикации 06.06.2022 г.

Разработка новых подходов для создания радиофармацевтических препаратов на основе антител с сохранением их специфичности и аффинности к антигенам остается одной из важных задач радиофармацевтики. В качестве хелатора для α -излучающего радионуклида ^{213}Bi предложен металлосвязывающий белок металлотрионеин. В работе представлены результаты изучения биораспределения ^{213}Bi -металлотрионеина (^{213}Bi -MT), ^{213}Bi -иммуноглобулина (^{213}Bi -IgG) и свободного ^{213}Bi в виде $^{213}\text{BiCl}_3$ в организме интактных мышей.

Ключевые слова: висмут-213, металлотионеин, иммуноглобулин, ядерная медицина

DOI: 10.56304/S2079562922030356

ВВЕДЕНИЕ

Методы ядерной медицины играют важную роль в диагностике и терапии многих онкологических заболеваний. В отличие от высокоэнергетической фотонной или протонной терапии, таргетная радионуклидная терапия (РНТ) представляет собой системный подход к лечению рака, позволяющий целенаправленно облучать первичную опухоль и ее метастазы с минимальным токсическим действием в отношении здоровых тканей. Основой РНТ являются радиофармацевтические лекарственные препараты (РФЛП), обладающие высоким средством и селективностью к мишеням в злокачественных клетках и способные доставлять высокую дозу радиоактивности непосредственно к опухоли.

Особый интерес для РНТ представляют α -излучающие радионуклиды, в частности, ^{213}Bi ($T_{1/2} = 45.6$ мин, $E_{\alpha} = 8.4$ МэВ, $E_{\gamma} = 440$ кэВ). Пролет α -частиц составляет 40–80 мкм (менее 10 клеточных диаметров), но при этом они характеризуются высокой линейной передачей энергии (ЛПЭ), вызывающей нерепарируемые двухнитевые разрывы молекулы ДНК [1]. Важно отметить, что летальность α -частиц не зависит от стадии клеточного цикла или оксигенации клеток опухо-

ли [2]. Это позволяет рассматривать таргетную альфа-терапию как перспективный способ лечения рака, особенно эффективный при наличии микрометастазов.

Векторная молекула является неотъемлемой частью терапевтического РФЛП, поскольку отвечает за избирательное взаимодействие с мишенью, что приводит к высокой концентрации радионуклида в ткани-мишени. Она может быть представлена низкомолекулярными пептидами или антителами и их фрагментами.

Моноклональные антитела, обладающие высокой специфичностью в отношении опухолевых антигенов, нашли широкое применение в диагностике и лечении рака. Более того, достижения гибридной технологии, позволяющие получать неограниченные количества моноклональных антител, также определили их широкое распространение в качестве векторных молекул для РНТ [3]. РФЛП на основе моноклональных антител с ^{213}Bi продемонстрировали высокую эффективность в ходе доклинических [4, 5] и клинических исследований при остром миелоидном лейкозе [6], меланоме [7, 8] и раке мочевого пузыря [9].

Крайне важно, чтобы векторная молекула сохраняла высокое сродство и селективность к ан-

тигенам опухоли и после введения хелатора для конъюгации с радионуклидом. Для предотвращения снижения иммуногенности предлагается конъюгировать антитела с металлотиионеинами – низкомолекулярными белками, богатыми цистеином, и способными служить хелатором для ^{213}Bi [10]. Цель работы – изучить биораспределение ^{213}Bi –металлотиионеина (^{213}Bi –МТ) и ^{213}Bi –иммуноглобулина (^{213}Bi –IgG) и сравнить их с $^{213}\text{BiCl}_3$.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

^{213}Bi в виде хлорида $^{213}\text{BiCl}_3$ был получен из АО “ГНЦ РФ – ФЭИ” (г. Обнинск, Россия).

Методики получения металлотиионеина (МТ), иммуноглобулинов (IgG) к тиреоглобулину, а также методики конъюгации МТ с IgG и получения ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG подробно представлены в работе [11].

Для изучения биораспределения ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ были использованы intactные беспородные мыши ($n = 36$), самки, с массой тела 20–25 г. Животным, поделенным на 3 равные группы, внутривенно (в хвостовую вену) было введено по 0.1 мл ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG или $^{213}\text{BiCl}_3$ с активностью 0.37 МБк. После введения радиоактивных веществ животные содержались в изолированном помещении, специально предназначенном для работы с РФЛП. Все работы с экспериментальными животными проводились в соответствии с отечественными нормативами и современными международными биоэтическими стандартами по работе с лабораторными животными.

Через 5 мин, 1 и 3 ч после введения животных подвергали эвтаназии (по 4 животных на каждый срок) путем декапитации, изымали внутренние органы и ткани, помещали их в пластиковые пробирки, взвешивали и проводили радиометрию с помощью автоматического гамма-счетчика “Wizard” (версия 2480 “PerkinElmer/Wallac”, Финляндия). На момент введения в отдельные пробирки отбирали пробы ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ в объеме 0.1 мл для использования в качестве стандарта введенной дозы.

По данным радиометрии на каждый срок наблюдения рассчитывали накопление ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG или $^{213}\text{BiCl}_3$ в 1 г органа или ткани в процентах от введенного количества (%/г), а также общее содержание радиоактивности в органе или ткани (%) с использованием непосредственно полученных результатов взвешивания органов либо таблиц среднего веса соответствующих органов или тканей мышей.

Статистическая обработка результатов радиометрии выполнялась с помощью программы “Origin 2019b” с вычислением средних арифметиче-

ских значений (M) и стандартных ошибок среднего (m). Достоверность различий между группами оценивали с помощью однофакторного дисперсионного анализа ANOVA с поправкой Бонферрони для попарных сравнений. Различия считались статистически значимыми при $p < 0.05$.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В табл. 1 и 2 представлены результаты биологического распределения ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG и несвязанного ^{213}Bi в виде $^{213}\text{BiCl}_3$. В ряде внутренних органов отмечены существенные различия в биораспределении ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG по сравнению с $^{213}\text{BiCl}_3$. Так, в крови содержание $^{213}\text{BiCl}_3$ (3.98–14.80%/г) было статистически значимо выше по сравнению с ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG (табл. 1). Максимальные концентрации ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG в крови не превышали 3.27 и 3.36%/г, снижаясь через 3 ч до 0.47 и 1.02%/г соответственно.

Обращает на себя внимание то обстоятельство, что через 5 мин после введения накопление ^{213}Bi –МТ в почках (76.90%/г) выше, чем свободного ^{213}Bi (20.90%/г) и ^{213}Bi –IgG (37.60%/г). Через 1 ч после введения содержание ^{213}Bi –МТ в почках возрастало до 132.00%/г и оставалось высоким (115.20%/г) и через 3 ч, в то время как содержание $^{213}\text{BiCl}_3$ в почках значительно снижается. Отмеченный феномен, очевидно, связан с тем, что уже через 1 ч происходит диссоциация комплекса ^{213}Bi –МТ и почками абсорбируется свободный ^{213}Bi . Аналогичный результат наблюдался при введении ^{213}Bi –IgG, однако его уровень накопления в почках был ниже (до 79.20%/г) по сравнению с ^{213}Bi –МТ.

В печени содержание ^{213}Bi –МТ менялось незначительно: от 2.38 до 2.80%/г. Концентрация ^{213}Bi –IgG была чуть выше и составила 4.71–6.60%/г, тогда как концентрация $^{213}\text{BiCl}_3$ достигала 15.30%/г через 1 ч после введения (табл. 1).

Повышенные концентрации $^{213}\text{BiCl}_3$, по сравнению с ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG, наблюдались в легких и селезенке. В легких накопление $^{213}\text{BiCl}_3$ снижалось за 3 ч с 13.20 до 6.13%/г, в то время как концентрации ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG были статистически значимо ниже и составили 0.79–3.79%/г и 0.57–5.19%/г соответственно. Накопление $^{213}\text{BiCl}_3$ в селезенке возрастало с 3.08 до 10.40%/г в срок 1 ч после введения, снижаясь через 3 ч до 5.67%/г. В свою очередь, уровни ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG не превышали 2.52 и 1.63%/г (табл. 1).

О диссоциации комплекса свидетельствует существенное увеличение уровня радиоактивности в щитовидной железе через 1 и 3 ч после введения

Таблица 1. Концентрация ^{213}Bi –MT, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ в органах и тканях intactных мышей после внутривенного введения (в % от введенной дозы на 1 г органа или ткани)

Наименование органа, ткани	Наименование препарата	Время после введения		
		5 мин	1 ч	3 ч
Кровь	^{213}Bi –MT	$3.27 \pm 0.57^*$	$1.43 \pm 0.27^*$	$0.47 \pm 0.07^*$
	^{213}Bi –IgG	$3.36 \pm 0.25^*$	$1.02 \pm 0.08^*$	$1.02 \pm 0.13^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	12.50 ± 0.41	14.80 ± 2.90	3.98 ± 0.48
Щитовидная железа	^{213}Bi –MT	$18.20 \pm 2.19^*$	112.00 ± 9.24	80.00 ± 3.85
	^{213}Bi –IgG	$14.90 \pm 1.73^*$	35.20 ± 8.13	27.50 ± 6.56
	$^{213}\text{BiCl}_3$	55.70 ± 13.80	67.20 ± 14.80	48.80 ± 5.25
Легкие	^{213}Bi –MT	$3.79 \pm 0.67^*$	$0.79 \pm 0.09^*$	$0.95 \pm 0.21^*$
	^{213}Bi –IgG	$5.19 \pm 0.85^*$	$2.07 \pm 0.28^*$	$0.57 \pm 0.12^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	13.20 ± 1.31	9.24 ± 2.59	6.13 ± 1.31
Печень	^{213}Bi –MT	2.66 ± 0.26	$2.80 \pm 0.69^*$	2.38 ± 0.25
	^{213}Bi –IgG	4.71 ± 1.29	$6.60 \pm 0.46^*$	5.38 ± 1.21
	$^{213}\text{BiCl}_3$	3.19 ± 0.31	15.30 ± 3.40	4.75 ± 0.94
Почки	^{213}Bi –MT	$76.90 \pm 6.27^*$	132.00 ± 5.51	$115.20 \pm 13.00^*$
	^{213}Bi –IgG	37.60 ± 5.11	79.20 ± 4.49	59.50 ± 6.05
	$^{213}\text{BiCl}_3$	20.90 ± 2.33	141.60 ± 39.30	53.90 ± 1.94
Сердце	^{213}Bi –MT	0.98 ± 0.09	2.03 ± 0.38	0.59 ± 0.14
	^{213}Bi –IgG	0.81 ± 0.08	0.52 ± 0.10	0.18 ± 0.04
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.33 ± 0.34	1.38 ± 0.14	0.60 ± 0.16
Селезенка	^{213}Bi –MT	1.63 ± 0.33	$0.66 \pm 0.14^*$	$1.09 \pm 0.24^*$
	^{213}Bi –IgG	2.18 ± 0.57	$2.52 \pm 0.18^*$	$1.38 \pm 0.36^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	3.08 ± 0.96	10.40 ± 2.24	5.67 ± 0.96
Желудок	^{213}Bi –MT	0.90 ± 0.15	$0.26 \pm 0.04^*$	0.84 ± 0.20
	^{213}Bi –IgG	0.95 ± 0.12	$0.77 \pm 0.07^*$	0.66 ± 0.18
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.65 ± 0.32	1.82 ± 0.34	0.40 ± 0.09
Кишечник	^{213}Bi –MT	1.35 ± 0.12	1.14 ± 0.28	0.80 ± 0.18
	^{213}Bi –IgG	1.47 ± 0.20	1.11 ± 0.09	0.95 ± 0.07
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.16 ± 0.32	0.81 ± 0.18	0.86 ± 0.20
Мозг головной	^{213}Bi –MT	$0.07 \pm 0.01^*$	$0.10 \pm 0.01^*$	0.10 ± 0.02
	^{213}Bi –IgG	$0.10 \pm 0.03^*$	0.12 ± 0.03	$0.45 \pm 0.10^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.53 ± 0.09	0.29 ± 0.07	0.11 ± 0.02
Кожа	^{213}Bi –MT	0.87 ± 0.08	1.30 ± 0.30	0.65 ± 0.11
	^{213}Bi –IgG	0.91 ± 0.10	1.45 ± 0.32	$0.74 \pm 0.16^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.38 ± 0.36	0.95 ± 0.16	0.25 ± 0.02
Мышца бедра	^{213}Bi –MT	$0.41 \pm 0.06^*$	0.25 ± 0.06	0.12 ± 0.01
	^{213}Bi –IgG	$0.42 \pm 0.08^*$	0.68 ± 0.10	0.48 ± 0.09
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.04 ± 0.19	0.43 ± 0.07	0.25 ± 0.06
Кость бедра	^{213}Bi –MT	1.04 ± 0.26	0.93 ± 0.23	0.94 ± 0.27
	^{213}Bi –IgG	1.77 ± 0.21	2.79 ± 0.29	1.22 ± 0.27
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.53 ± 0.25	1.94 ± 0.60	1.03 ± 0.24

* $p < 0.05$ по сравнению с контрольной группой ($^{213}\text{BiCl}_3$).

Таблица 2. Общее содержание ^{213}Bi –MT, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ в органах и тканях интактных мышей после внутривенного введения (в % от введенной дозы на весь орган или ткань)

Наименование органа, ткани	Наименование препарата	Время после введения		
		5 мин	1 ч	3 ч
Кровь	^{213}Bi –MT	$7.90 \pm 1.44^*$	$3.20 \pm 0.49^*$	$1.20 \pm 0.20^*$
	^{213}Bi –IgG	$8.50 \pm 0.54^*$	$2.20 \pm 0.13^*$	$2.60 \pm 0.40^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	28.90 ± 1.29	35.60 ± 7.34	9.20 ± 1.18
Щитовидная железа	^{213}Bi –MT	0.02 ± 0.01	0.11 ± 0.01	0.08 ± 0.01
	^{213}Bi –IgG	0.02 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.03 ± 0.01
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.06 ± 0.02	0.07 ± 0.02	0.05 ± 0.01
Легкие	^{213}Bi –MT	$0.88 \pm 0.19^*$	$0.16 \pm 0.02^*$	$0.27 \pm 0.07^*$
	^{213}Bi –IgG	$1.27 \pm 0.27^*$	$0.40 \pm 0.06^*$	$0.13 \pm 0.03^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	2.83 ± 0.15	2.06 ± 0.56	1.39 ± 0.35
Печень	^{213}Bi –MT	4.99 ± 0.49	$5.22 \pm 1.32^*$	4.49 ± 0.49
	^{213}Bi –IgG	8.77 ± 2.30	$12.40 \pm 0.86^*$	10.00 ± 2.29
	$^{213}\text{BiCl}_3$	6.12 ± 0.60	29.10 ± 6.27	8.88 ± 1.68
Почки	^{213}Bi –MT	$45.50 \pm 3.61^*$	58.00 ± 2.92	$56.20 \pm 2.50^*$
	^{213}Bi –IgG	$22.30 \pm 3.14^*$	35.30 ± 2.84	30.00 ± 2.94
	$^{213}\text{BiCl}_3$	8.63 ± 1.01	70.00 ± 18.60	23.20 ± 2.76
Сердце	^{213}Bi –MT	0.17 ± 0.01	0.29 ± 0.05	0.09 ± 0.02
	^{213}Bi –IgG	0.13 ± 0.01	0.07 ± 0.01	0.03 ± 0.01
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.19 ± 0.05	0.20 ± 0.02	0.09 ± 0.02
Селезенка	^{213}Bi –MT	0.24 ± 0.07	$0.11 \pm 0.03^*$	$0.16 \pm 0.03^*$
	^{213}Bi –IgG	0.25 ± 0.06	$0.33 \pm 0.03^*$	$0.22 \pm 0.05^*$
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.37 ± 0.12	1.36 ± 0.35	0.74 ± 0.15
Желудок	^{213}Bi –MT	0.16 ± 0.03	$0.04 \pm 0.01^*$	0.12 ± 0.01
	^{213}Bi –IgG	0.14 ± 0.03	$0.09 \pm 0.01^*$	0.11 ± 0.03
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.24 ± 0.03	0.29 ± 0.06	0.06 ± 0.01
Кишечник	^{213}Bi –MT	1.66 ± 0.14	1.43 ± 0.34	1.00 ± 0.24
	^{213}Bi –IgG	1.85 ± 0.23	1.35 ± 0.12	1.24 ± 0.10
	$^{213}\text{BiCl}_3$	1.48 ± 0.43	1.09 ± 0.24	1.03 ± 0.22
Мозг головной	^{213}Bi –MT	$0.03 \pm 0.01^*$	0.04 ± 0.01	0.03 ± 0.01
	^{213}Bi –IgG	$0.04 \pm 0.01^*$	0.05 ± 0.01	0.17 ± 0.04
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.18 ± 0.04	0.08 ± 0.01	0.04 ± 0.01
Кожа	^{213}Bi –MT	5.40 ± 0.60	7.50 ± 1.45	4.18 ± 0.79
	^{213}Bi –IgG	5.90 ± 0.52	8.14 ± 1.90	4.90 ± 1.29
	$^{213}\text{BiCl}_3$	8.09 ± 2.00	5.83 ± 0.98	1.50 ± 0.11
Мышца бедра	^{213}Bi –MT	$6.30 \pm 1.02^*$	3.62 ± 0.74	1.89 ± 0.02
	^{213}Bi –IgG	$6.74 \pm 1.26^*$	9.42 ± 1.36	7.64 ± 1.33
	$^{213}\text{BiCl}_3$	15.20 ± 2.23	6.53 ± 0.91	3.80 ± 0.91
Кость бедра	^{213}Bi –MT	0.13 ± 0.03	0.11 ± 0.02	0.12 ± 0.04
	^{213}Bi –IgG	0.23 ± 0.03	0.31 ± 0.03	0.15 ± 0.03
	$^{213}\text{BiCl}_3$	0.19 ± 0.04	0.23 ± 0.07	0.13 ± 0.03

 * $p < 0.05$ по сравнению с контрольной группой ($^{213}\text{BiCl}_3$).

^{213}Bi –МТ до 112.0 и 80.00%/г соответственно. Описанная закономерность отмечена и при введении комплекса ^{213}Bi –IgG, однако она менее выражена. Накопление ^{213}Bi –IgG варьировало от 14.90 до 35.20%/г, причем его содержание в сроки 1 и 3 ч было статистически значимо ниже по сравнению с ^{213}Bi –МТ (табл. 1).

В остальных внутренних органах и тканях содержание исследуемых меченых соединений было невысоким. При этом статистически значимые различия между уровнями накопления ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ были отмечены лишь в отдельные сроки исследования (табл. 1). Минимальная концентрация была зарегистрирована в головном мозге: не более 0.10%/г, 0.45%/г и 0.53%/г для ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ соответственно.

При анализе общего содержания меченых соединений было выявлено, что в большинстве внутренних органов, за исключением почек, концентрация $^{213}\text{BiCl}_3$ выше, чем ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG (табл. 2). Наиболее высокие уровни общего содержания ^{213}Bi –МТ, ^{213}Bi –IgG и $^{213}\text{BiCl}_3$ отмечались в крови, почках и мышечной ткани (табл. 2).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, концентрации ^{213}Bi –МТ и ^{213}Bi –IgG практически во всех внутренних органах были ниже по сравнению с $^{213}\text{BiCl}_3$ ($p < 0.05$), либо не имели статистически значимых различий. Лишь в почках и щитовидной железе наибо-

лее высоким было содержание ^{213}Bi –МТ, что позволяет предполагать недостаточную стабильность комплекса ^{213}Bi –МТ *in vivo*, в связи с чем необходимо проведение дополнительных исследований для выбора оптимальных условий получения более стабильного комплекса ^{213}Bi –МТ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Alenkorah S., Cassells I., Deroose C.M., et al. // *Pharmaceutics*. 2021. V. 13 (5) P. 599.
2. Nelson B.J.B., Andersson J.D., Wuest F. // *Pharmaceutics*. 2021. V. 13 (1). P. 49.
3. Listek M., Hönow A., Gossen M., et al. // *Nat. Sci. Rep.* 2020. V. 10. P. 1664.
4. Fichou N., Gouard S., Maurel C., et al. // *Front. Med.* 2015. V. 2. P. 76.
5. Fazel J., Rötzer S., Seidl C., et al. // *Cancer Biol. Ther.* 2015. V. 16. P. 1526.
6. Jurcic J.G., Larson S.M., Sgouros G., et al. // *Blood*. 2002. V. 100. P. 1233.
7. Allen B.J., Singla A.A., Rizvi S.M.A., et al. // *Immunotherapy*. 2011. V. 3. P. 1041.
8. Raja C., Graham P., Abbas Rizvi S.M., et al. // *Cancer Biol. Ther.* 2007. V. 6. P. 846.
9. Autenrieth M.E., Seidl C., Bruchertseifer F., et al. // *Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging*. 2018. V. 45. P. 1364.
10. Si M., Lang J. // *J. Hematol. Oncol.* 2018. V. 11 (1). P. 107.
11. Petriev V.M., Skvortsov V.G., Novikova I.S., et al. // *Vopr. Biol. Med. Pharm. Khim.* 2009. No. 6. P. 46 (in Russian).

Biodistribution of ^{213}Bi –Metallothionein and ^{213}Bi –IgG in Intact Mice

V. M. Petriev^{1, 2, *}, V. K. Tishchenko¹, P. V. Shegai³, S. A. Ivanov^{1, 4}, and A. D. Kaprin^{3, 4}

¹Tsyb Medical Radiological Research Centre – Branch of the National Medical Research Radiological Centre of the Ministry of Health of the Russian Federation, Kaluga oblast, Obninsk, 249031 Russia

²National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

³National Medical Research Radiological Centre of the Ministry of Health of the Russian Federation, Kaluga oblast, Obninsk, 249036 Russia

⁴Peoples' Friendship University of Russia (RUDN University), Moscow, 117198 Russia

*e-mail: vikshir82@mail.ru

Received May 31, 2022; revised May 31, 2022; accepted June 6, 2022

Abstract—The search of new approaches to development of radiopharmaceuticals based on antibodies and the retention of their specificity and affinity to antigens remains one of the most important problems of radiopharmaceutics. The metal-binding protein metallothionein has been proposed as a chelator for the α -emitting radionuclide ^{213}Bi . In this work the results of biodistribution study of ^{213}Bi –metallothionein (^{213}Bi –МТ), ^{213}Bi –immunoglobulin (^{213}Bi –IgG) and free ^{213}Bi in a form of $^{213}\text{BiCl}_3$ in intact mice are presented.

Keywords: bismuth-213, metallothionein, immunoglobulin, nuclear medicine

УДК 615.849.12

НЕАНТРОПОМОРФНЫЙ ВОДНЫЙ ДИНАМИЧЕСКИЙ ФАНТОМ ДЛЯ ПРОТОННОЙ ТЕРАПИИ СКАНИРУЮЩИМ ПУЧКОМ

© 2022 г. М. А. Белихин^{a, b, *}, А. А. Пряничников^{a, b}, А. П. Черняев^b, А. Е. Шемяков^a

^a Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук, Москва, 119991 Россия

^b Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, Москва, 119991 Россия

*E-mail: mikhailbelikhin@yandex.ru

Поступила в редакцию 31.05.2022 г.

После доработки 31.05.2022 г.

Принята к публикации 06.06.2022 г.

В работе продемонстрированы возможности компактного неантропоморфного водного динамического фантома для протонной терапии сканирующим пучком. Данный фантом позволяет моделировать интрафракционное движение тканеэквивалентной мишени в водной среде в различных режимах. Конструкция фантома оптимизирована под работу с установками с фиксированным горизонтальным пучком без гантри. Мишени фантома совместимы со стандартным дозиметрическим оборудованием, таким как ионизационные камеры и дозиметрические пленки. Динамический фантом имеет малые габаритные размеры и массу, низкую себестоимость, широкий функционал с возможностью его доработки, а также прост в эксплуатации. Фантом может использоваться как для исследовательских целей, так и рутинной процедуры контроля качества протонной терапии интрафракционно движущихся опухолей.

Ключевые слова: протонная терапия сканирующим пучком, динамический фантом, интрафракционное движение

DOI: 10.56304/S207956292203006X

ВВЕДЕНИЕ

Расширение области применения протонной лучевой терапии [1] сканирующим пучком на локализации грудной клетке и брюшной полости осложняется существенным влиянием интрафракционного движения [2] внутренних органов и тканей. Прямой перенос методов компенсации такого движения из традиционной фотонной лучевой терапии в протонную терапию затруднителен [3] и требует проведения дополнительных экспериментальных исследований. Разработка новых методов компенсации интрафракционного движения, их тестирование, оценка их эффективности, а также рутинный контроль качества реализующих их систем и алгоритмов — все это требует соответствующего оборудования. Для решения данных задач используются динамические фантомы — приборы, моделирующие интрафракционное движение целевого объема в тканеэквивалентной среде. Такие фантомы подразделяются на два основных типа: антропоморфные и неантропоморфные [4]. Доступные к покупке динамические фантомы промышленного производства [5] имеют крайне высокую стоимость, поэтому часто могут быть недоступны для малых исследовательских групп. Кроме того, фантом промышленного

производства может иметь недостаточный функционал, а его доработка при этом может быть проблематична. К тому же антропоморфные фантомы, хотя и повторяют анатомию человека, являются твердотельными (изготавливаются из специальных пластиков), что затрудняет проведение абсолютной дозиметрии, так как проведение таких измерений не рекомендовано МАГАТЭ [6]. Поэтому некоторые исследовательские группы разрабатывают собственные эксклюзивные динамические фантомы [7–9] под свои исследовательские задачи. В текущей работе продемонстрированы возможности компактного неантропоморфного водного динамического фантома, разработанного совместно в АО ПРОТОМ и ФТЦ ФИАН для работы на комплексе протонной терапии “Прометеус” [10, 11].

КОНСТРУКЦИЯ И ПРИНЦИП ДЕЙСТВИЯ

Разработанный динамический фантом (рис. 1, табл. 1) представляет собой емкость с водой размером $20 \times 20 \times 20$ см с помещенной в нее тканеэквивалентной мишенью. Емкость выполнена из листового оргстекла толщиной 5 мм. Позиционирование мишени внутри объема фантома осуществляется по одной координате с помощью мо-

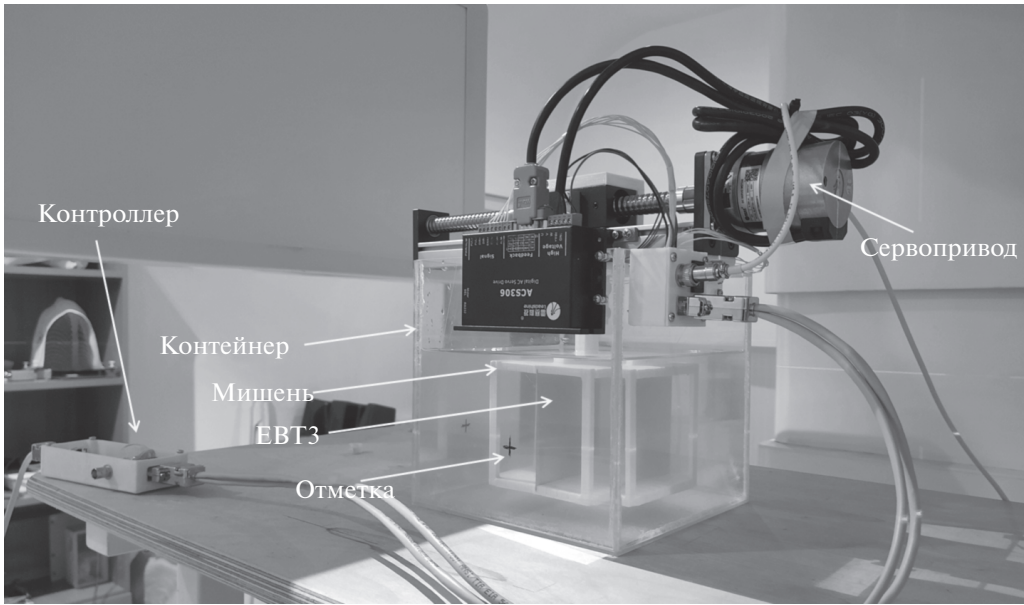


Рис. 1. Внешний вид динамического фантома с указанием основных функциональных элементов.

дуля линейного перемещения. Данный модуль состоит из шарико-винтовой передачи и серводвигателя с оптическим энкодером. Модуль позволяет позиционировать мишень с высокой повторяемостью и абсолютной точностью на уровне ± 0.1 мм с шагом 0.01 мм. Контроль крайних положений мишени обеспечивается концевыми датчиками. Установка начала отсчета производится по датчику Холла.

Мишень фантома изготовлена из PLA-пластика с помощью технологии 3D-печати и имеет габаритные размеры $10 \times 10 \times 10$ см. Она состоит из верхнего, нижнего оснований, ребер и боковых ограничителей. Основания мишени имеют попе-

речные и продольные пазы с шагом 10 мм и шириной 0.5 мм, служащие для размещения радиохромных пленок размером 90×100 мм. Ребра обеспечивают соединение верхнего и нижнего оснований таким образом, что внутренняя область мишени заполняется водой, а боковые окна обеспечивают беспрепятственный подвод пучка. Боковые ограничители выполняют одностороннюю фиксацию пленок, что позволяет анализировать их в единой системе отсчета относительно мишени. Все детали мишени выполнены с 10%-ым заполнением, что повышает их видимость при конусно-лучевой компьютерной томографии (КЛКТ). Установка мишени на модуль линейного

Таблица 1. Основные технические характеристики динамического фантома

Параметр	Величина
Размер контейнера, см	20 × 20 × 20
Размер мишени, см	Не более 10 × 10 × 10
Материал контейнера	Оргстекло
Материал мишени	PLA-пластик с 10%-ым заполнением
Толщина стенки контейнера, мм	5
Масса, кг	Не более 7
Шаг позиционирования, мм	0.01
Точность позиционирования, мм	Не хуже ± 0.1
Управление	ПК (RS485)
Дозиметрия	EBТЗ; PinPoint 31022

перемещения производится с помощью универсального пластикового крепления. Имеется возможность изготовления других мишеней под любые исследовательские задачи и их оперативной замены непосредственно в процессе работы.

Управление модулем линейного перемещения производится с помощью контроллера через драйвер. Контроллер имеет интерфейс RS485, с помощью которого подключается к управляющему персональному компьютеру. Интерфейс RS485 обеспечивает помехоустойчивый обмен данными при длине кабеля в несколько десятков метров, что позволяет размещать управляющий компьютер при работе с фантомом в пультуевой комнате ускорителя. Контроллер также оснащен модулями АЦП и ЦАП. Модуль АЦП используется для оцифровки аналогового сигнала внешней синхронизации, а модуль ЦАП — для формирования сигналов движения.

Конструкция фантома оптимизирована под работу на протонных установках с горизонтальным пучком. Оптимизация подразумевает отсутствие металлических конструктивных элементов в области облучения с целью исключения искажений дозовых полей, артефактов изображений КЛКТ и ограничений в возможных ракурсах подвода пучка.

При разработке динамического фантома использовались наиболее доступные и широко распространенные компоненты и материалы, что обеспечивает низкую себестоимость и возможность серийного производства.

МОДЕЛИ ДВИЖЕНИЯ

Динамический фантом позволяет моделировать интрафракционное движение мишени в пяти режимах: свободное дыхание (Free Breathing — FB); дыхание с задержками на глубоком вдохе (Deep Inspiration Breathing Hold — DIBH); свободное дыхание с флуктуациями (Free Breathing with Errors — FBwE); дыхание с задержками на глубоком вдохе с флуктуациями (Deep Inspiration Breathing Hold with Errors — DIBHwE); внешняя синхронизация (External Sync — ES).

Режимы FB, DIBH, FBwE, DIBHwE построены на основе интрафракционного движения, индуцированного дыханием. Модель движения мишени в этих режимах основана на ритме дыхания человека, состоящего из фаз вдоха, выдоха, паузы дыхания и задержки на глубоком вдохе. Соответствующие фазы описываются линейными функциями, что существенно упрощает алгоритмы управления и обеспечивает высокую предсказуемость траектории движения. Допущение линейного изменения положения мишени хотя и идеализирует модель движения и отдаляет ее от реальности, однако не вносит существенных ошибок в

эксперименты, поскольку распределение дозы в мишени зависит, прежде всего, не от закона изменения положения мишени, а от фазы, в которой пучок подводится к мишени. В случае необходимости моделирования движения по закону, максимально приближенному к реальному интрафракционному движению, необходимо использовать режим ES.

Режим ES позволяет модулировать положение мишени в пространстве внешним аналоговым сигналом произвольной формы в реальном времени. Например, с помощью данного режима можно производить моделирование интрафракционного движения, вызванного сердцебиением или перистальтикой, а также моделирование движения по сигналу дыхания реального пациента в реальном времени, что позволяет приблизить модель движения мишени фантома к реальности при исследовании эффективности методов компенсации движения [2].

В зависимости от ориентации динамического фантома относительно направления подвода пучка возможно моделирование различных типов движения. Если пучок подводится перпендикулярно к плоскости, в которой происходит движение мишени, то такое движение является поступательным и происходит без изменения плотности на пути пучка. Если пучок подводится параллельно направлению движения, то такое движение представляет собой изменение плотности на пути пучка. Если пучок подводится под некоторым углом к направлению движения, то такое движение является смешанным, поскольку происходит как геометрическое изменение положения мишени в пространстве, так и изменение плотности на пути пучка. Таким образом, использование перемещения мишени только вдоль одной координаты оказывается достаточным для моделирования различных типов интрафракционного движения.

ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

Управление динамическим фантомом осуществляется в специализированном программном обеспечении (рис. 2), разработанном в среде NI LabWindows CVI. Программное обеспечение позволяет управлять положением мишени в ручном режиме, выбирать модель движения, настраивать временные и амплитудные параметры данной модели, контролировать состояние фантома и координату мишени, получать данные от концевых датчиков, а также визуализировать сигнал движения в реальном времени.

ТЕСТИРОВАНИЕ

Тестирование динамического фантома было проведено на комплексе протонной терапии

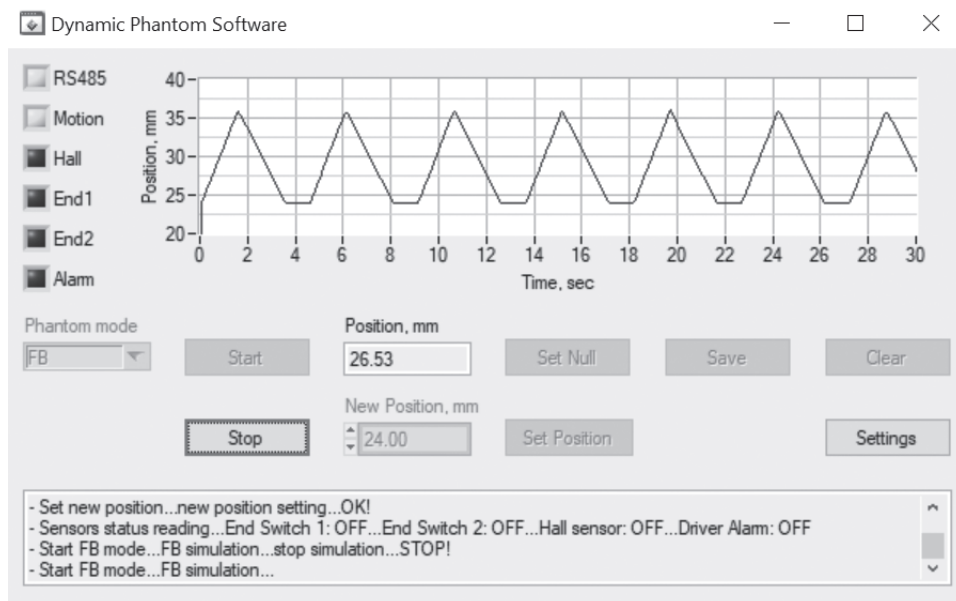


Рис. 2. Внешний вид программного обеспечения динамического фантома в процессе моделирования движения в режиме свободного дыхания (FB).

“Прометеус”, расположенном в г. Протвино. Позиционирование фантома в системе фиксации комплекса производится на специализированном столе с помощью лазерных сказателей по меткам, нанесенным на корпус (рис. 1). Верифи-

кация положения фантома проводится по двум ортогональным рентгеновским снимкам непосредственно перед началом облучения. КЛКТ фантома (рис. 3) выполняется при напряжении 140 кВ.

На основе КЛКТ производится расчет плана облучения, в котором РТВ имеет форму куба с объемом $5 \times 5 \times 5 \text{ см}^3$, а предписанная доза составляет 2 Гр. Доставка сканирующего пучка осуществляется с одного ракурса. Движение мишени происходит в режиме свободного дыхания в плоскости, перпендикулярной направлению подвода пучка. Ускорение протонов в синхротроне комплекса происходит в цикле с переменным периодом. Регистрация дозового распределения в центральном поперечном срезе мишени производится с помощью радиохромных пленок ЕВТЗ. Перед проведением облучения рассчитанный план был верифицирован с помощью ионизационной камеры PinPoint 31022.

Облучение мишени фантома по рассчитанному плану было произведено три раза: один раз без движения и два раза при движении с амплитудами 6 и 20 мм. Облученные пленки были оцифрованы и пересчитаны в дозовые распределения (рис. 4). Дозовое распределение в неподвижной мишени (рис. 4а) имеет высокую однородность на уровне 97.4%, что говорит о правильности выполнения рассчитанного плана облучения. Дозовые распределения в подвижной мишени (рис. 4б и 4в) имеют значительные искажения, вызванные интра-

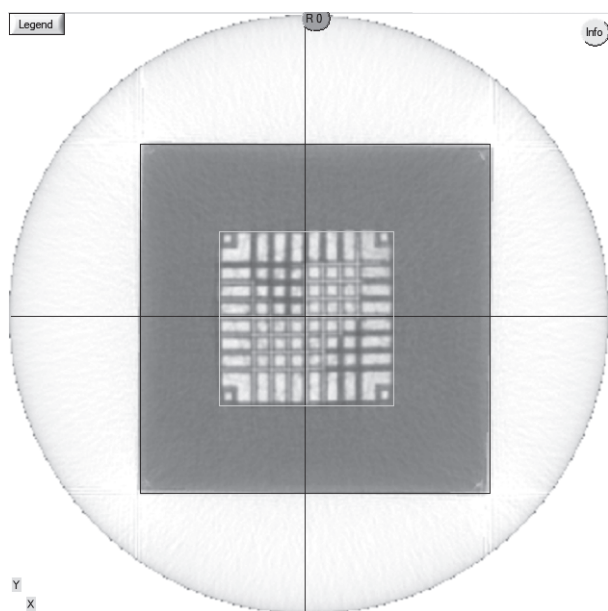


Рис. 3. Аксиальный срез КЛКТ динамического фантома в области нижнего основания мишени. На рисунке отчетливо видны пазы для установки дозиметрических пленок.

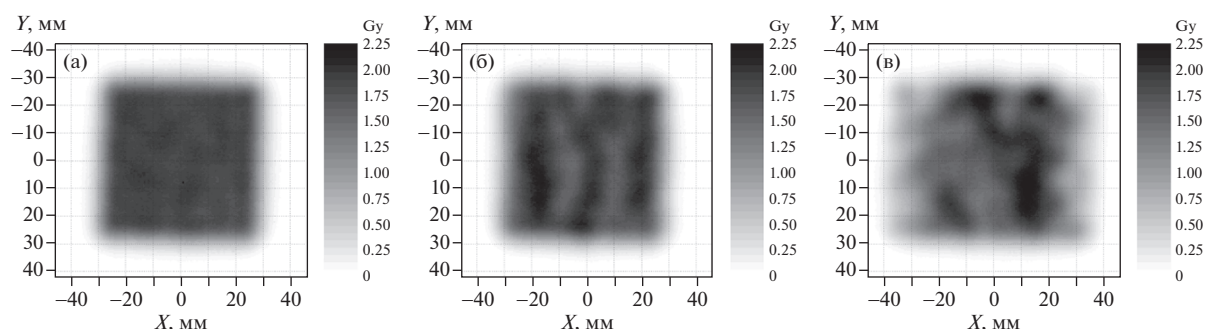


Рис. 4. Дозовые распределения в мишени: (а) без движения, (б) движение с амплитудой 6 мм, (в) движение с амплитудой 20 мм.

фракционным движением. Наблюдаемые эффекты говорят о работоспособности построенной модели интрафракционного движения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработанный неантропоморфный водный динамический фантом имеет низкую себестоимость, обладает высокой точностью и повторяемостью интрафракционного движения, реализует большой набор моделей движения, имеет компактные размеры и полностью совместим с протонными установками с горизонтальным сканирующим пучком. Все это позволяет использовать его как для широкого круга экспериментальных исследовательских задач, так и для рутинного контроля качества в клинической практике протонной терапии интрафракционно движущихся опухолей.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при государственной поддержке в рамках Федеральной Научно-Технической Программы № 075-15-2021-1347 от 5 октября 2021 года от Министерства Науки и Высшего Образования Российской Федерации “Разработка новых технологий диагностики и лучевой терапии социально значимых заболеваний протонными и ионными пучками с использованием бинарных ядерно-физических методов”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Chernyaev A.P., Klenov G.I., Bushmanov A.Yu., Pryanichnikov A.A., Belikhin M.A., Lykova E.N. // *Med. Radiol. Rad. Bezopasn.* 2019. V. 64 (2). P. 11 (in Russian).
2. Kubiak T. // *Brit. J. Radiol.* 2016. V. 89. P. 1066.
3. Bertholet J., Knopf A., Eiben B., McClelland J., Greenwood A., Harris E., Menten M., Poulsen P., Nguyen D.T., Keall P., Oelfke U. // *Phys. Med. Biol.* 2019. V. 64 (15). P. 15TR01.
<https://doi.org/10.1088/1361-6560/ab2ba8>
4. Trnková P. et al. // *Phys. Med.* 2018. V. 54. P. 121.
5. Rooney M., Kelly S. // *Phys. Med.* 2016. V. 32 (2). P. 425.
6. TRS-398. Absorbed Dose Determination in External Beam Radiotherapy. An International Code of Practice for Dosimetry Based on Standards of Absorbed Dose to Water. 2000. Vienna: IAEA.
7. Kostiukhina N. et al. // *Phys. Med. Biol.* 2017. V. 62 (20). P. 8136.
8. Haas et al. // *Med. Phys.* 2014. V. 41 (2). P. 022106.
9. Perrin R.L. et al. // *Phys. Med. Biol.* 2017. V. 62. P. 2486.
10. Balakin V.E., Belikhin M.A., Pryanichnikov A.A., Shemyakov A.E., Strelnikova N.S. // *KnE Energy Phys.* 2018. V. 3 (2). P. 45.
11. Pryanichnikov A.A. et al. // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2018. V. 15 (7). P. 981.

Nonanthropomorphic Dynamic Water Phantom for Spot Scanning Proton Therapy

M. A. Belikhin^{1, 2, *}, A. A. Pryanichnikov^{1, 2}, A. P. Chernyaev², and A. E. Shemyakov¹

¹Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia

²Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

*e-mail: mikhailbelikhin@yandex.ru

Received May 31, 2022; revised May 31, 2022; accepted June 6, 2022

Abstract—This paper demonstrates the capabilities of a compact non-anthropomorphic water dynamic phantom for spot scanning proton therapy. This phantom simulates the intrafractional motion of a tissue-equivalent target in water based on various motion patterns. The design of the phantom is optimized for use with

fixed horizontal beam setups without gantry. The phantom targets are compatible with standard dosimetry equipment such as ionization chambers and dosimetric films. The dynamic phantom has small dimensions and weight, low cost, wide functionality with the possibility of its refinement, and is also easy to use. The phantom can be used both for research purposes and for routine quality assurance of proton therapy for intrafractionally moving tumors.

Keywords: spot scanning proton therapy, dynamic phantom, intrafractional motion