## С.Ю. ТАСКАЕВ

# УСКОРИТЕЛЬНЫЙ источник нейтронов VITA



МОСКВА ФИЗМАТЛИТ® 2024 УДК 621.384.65 ББК 22.3с Т 23

Издание осуществлено при финансовой поддержке Российского научного фонда, проект 19-73-30005

Таскаев С.Ю. **Ускорительный источник нейтронов VITA.** — М.: ФИЗМАТЛИТ, 2024. — 248 с. + 8 с. цв. вкл. — ISBN 978-5-9221-1979-5.

Монография посвящена ускорительному источнику нейтронов, сначала предложенному для решения проблемы бор-нейтронозахватной терапии — перспективной методики лечения злокачественных опухолей, а затем ставшему востребованным и для других приложений. Источник нейтронов состоит из тандемного электростатического ускорителя заряженных частиц оригинальной конструкции (названного со временем ускорителем-тандемом с вакуумной изоляцией) для получения пучка протонов или дейтронов, литиевой мишени для генерации нейтронов и ряда систем формирования пучка нейтронов. Приведено детальное описание всех составных частей источника нейтронов и представлены результаты проведенных научных исследований.

Книга предназначена физикам, химикам, биологам и медицинским работникам, а также студентам и аспирантам физических, химических, биологических и медицинских специальностей университетов.

> © ФИЗМАТЛИТ, 2024 © С.Ю. Таскаев, 2024

## оглавление

Предисловие	5
Глава 1. Основы бор-нейтронозахватной терапии	8
Глава 2. <b>Источники нейтронов</b>	16
Глава 3. Ускорительный источник нейтронов VITA	21
Глава 4. Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией Т.А. Быков, Я.А. Колесников, А.М. Кошкарев, Г.М. Остреинов, С.С. Савинов, И.Н. Сорокин, И.М. Шидло, С.Ю. Таскаев,	26
4.1. Конструкция ускорителя	26
4.2. Выбор количества электролов	31
4.3. Влияние запасенной энергии на электрическую прочность высоко-	01
вольтного вакуумного зазора	33
4.4. Подъем напряжения на высоковольтных вакуумных зазорах уско-	
рителя	34
4.5. Темновые токи в вакуумных зазорах ускорителя	34
4.6. Увеличение напряжения ускорителя	37
4.7. Обдирочная мишень	41
4.8. Увеличение тока пучка протонов	53
4.9. Заключение	87
Глава 5. Литиевая нейтроногенерирующая мишень	
М.И. Бикчурина, Д.А. Касатов, Е.О. Соколова, С.Ю. Таскаев	88
5.1.1-й вариант мишени	89
5.2. 2-й вариант мишени	91
5.3. 3-й вариант мишени	93
5.4. 4-й вариант мишени	96
5.5.5-й вариант мишени	97
5.6. Стенд напыления лития	98
5.7. Метод <i>in situ</i> измерения толщины слоя лития	100
5.8. Исследование элементного состава литиевого слоя мишени	105
5.9. Заключение	115
Глава 6. <b>Система формирования пучка нейтронов</b> Е.А. Берендеев, Т.В. Сычева, С.Ю. Таскаев	116
1 лава 1. <b>Дозиметрия</b> ЛА Касатов В.В. Поросев Ю.С. Таскаева, С.Ю. Таскаева	194
71 Matoradonutulu neterton hautonuon	124
	121
и.2. плеточный дозиметр	191

Глава 8. Приложения ускорительного источника нейтронов VITA	133
Глава 9. <b>Получение фундаментальных знаний</b> <i>М.И. Бикчурина, Д.А. Касатов, Е.О. Соколова, С.Ю. Таскаев</i>	136
9.1. Измерение выхода нейтронов из литиевой мишени	136
9.2. Измерение сечения реакции ${}^{7}\text{Li}(p,p'\gamma){}^{7}\text{Li}$ и выхода фотонов с энер- гией 478 кэВ из толстой литиевой мишени	149 162
Глава 10. Исследование радиационного блистеринга	
Т.А. Быков, Д.А. Касатов, А.М. Кошкарев, Я.А. Колесников, Е.О. Соколова, И.М. Щудло, С.Ю. Таскаев	174
10.1. Исследование радиационного блистеринга поверхности меди и тан- тала при имплантации 2 МэВ протонов	175
<ul> <li>10.2. Исследование влияния радиационного блистеринга поверхности меди на выход нейтронов из литиевого слоя</li></ul>	193 195 206 209 215 218
Глава 11. Внедрение ускорительного источника нейтронов VITA в онкологические клиники	220
Глава 12. <b>Литий-нейтронозахватная терапия</b> <i>Н.П. Бгатова, А.И. Касатова, Ю.С. Таскаева, С.Ю. Таскаев</i>	222
Заключение	227
Список литературы	228

## Предисловие

Монография посвящена ускорительному источнику нейтронов, сначала предложенному для решения проблемы бор-нейтронозахватной терапии — перспективной методики лечения злокачественных опухолей, а затем ставшему востребованным и для других приложений. Источник нейтронов состоит из тандемного электростатического ускорителя заряженных частиц оригинальной конструкции (названного со временем ускорителем-тандемом с вакуумной изоляцией) для получения пучка протонов или дейтронов, литиевой мишени для генерации нейтронов и ряда систем формирования пучка нейтронов. Для идентификации источника нейтронов используют имя собственное VITA — аббревиатуру Vacuum Insulated Tandem Accelerator (ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией), созвучную латинскому слову «жизнь».

В монографии приведено детальное описание всех составных частей источника нейтронов, в каждой из которых реализованы новые идеи, и представлены результаты проведенных научных исследований. Главы 4–7, 9, 10 и 12 написаны в соавторстве.

За любым реализованным решением стоят люди и стечение обстоятельств. Позвольте отметить некоторые важные вехи, не претендуя на объективность.

1. Проект начался в 1997 г. с телефонного разговора заведующего лабораторией ИЯФ СО РАН Г.И. Сильвестрова с однокурсником по МГУ В.Н. Кононовым из ФЭИ, Обнинск. В разговоре Виктор Николаевич поведал, что существует красивая методика лечения опухолей — бор-нейтронозахватная терапия, и спросил, не знает ли Григорий Иванович кого-то, кто может сделать ускоритель для нее. На что Григорий Иванович после уточнения деталей ответил: «мы». Конечно, это была сложная задача, но многие сотрудники института, покоренные красотой методики БНЗТ и желающие сделать что-то, полезное человечеству, с энтузиазмом взялись за решение этой задачи, предлагая пойти новым, непроторенным путем. Физический проект был оформлен в ноябре 1997 г. в виде препринта [1], а в следующем году опубликован в специализированном научном журнале [2].

2. Первое финансирование на реализацию проекта было получено от Международного научно-технического центра. С 7 февраля 2000 г. группа энтузиастов еженедельно по понедельникам собиралась за круглым столом для обсуждения предложений. Этот этап обсуждений завершился 22 апреля 2003 г. из-за скоропостижной смерти идейного вдохновителя Г.И. Сильвестрова.

3. Для продолжения работ, которые требовали изготовления источника, была сформирована группа в составе плазменной лаборатории ИЯФ СО РАН. Если в 2000-е финансирование проекта обеспечивали только международные организации (три гранта МНТЦ, грант Департамента энергетики США, контракты с Kawasaki (Япония), IBA (Бельгия) и др.), то в 2010-е — уже преимущественно российские организации, в наибольшей степени Российский научный фонд, поддержавший с 2014 г. создание новой лаборатории, а с 2019 г. — лаборатории мирового уровня. Всего для реализации проекта было получено 30 грантов и заключено 8 контрактов.

4. Многие выдвигаемые идеи, в том числе новый тип ускорителя заряженных частиц и литиевая мишень, подвергались нещадной критике, и доказать обоснованность идей можно было только демонстрацией их работоспособности. Так, к 2006 г. был создан ускоритель, и на нем получено напряжение и протонный пучок, к 2008 г. была создана литиевая мишень, и на ней осуществлена генерация нейтронов. Однако получаемый ток протонного пучка был в 100 раз меньше ожидаемого, и в течение 7 лет не находилось способа поднять его. По этой причине у многих сотрудников иссяк энтузиазм, и они отстранились от участия в проекте. Проект мог погибнуть, если бы автор монографии, И.Н. Сорокин и Б.Ф. Баянов не продолжили исследования с привлечением студентов, ставших впоследствии большой и дружной командой БНЗТ. Конечно, команда БНЗТ — это костяк проекта, но кроме них более 200 человек из разных организаций принимали и принимают участие в его реализации и в продвижении, за что им всем большое спасибо.

5. Когда у юноши или девушки появлялась возможность влиться в команду БНЗТ, то перед ними ставилась задача найти дело, интересное для себя и полезное всем нам.

6. Команда БНЗТ постоянно росла. Сейчас в нее входят: старшие научные сотрудники к.т.н. Игорь Сорокин, к.ф.-м.н. Вячеслав Поросев, к.ф.-м.н. Дмитрий Касатов, к.ф.-м.н. Евгений Берендеев, к.м.н. Юлия Таскаева; научные сотрудники к.ф.-м.н. Евгения Соколова, к.ф.-м.н. Ярослав Колесников, Иван Щудло, Сергей Савинов, Анна Касатова, Георгий Остреинов, Татьяна Сычева, аспиранты Алексей Кошкарев, Тимофей Быков, Марина Бикчурина, Глеб Верховод, Антон Кузнецов, Ибрагим Ибрагим (Сирия); студенты Виктория Коновалова, Тимур Кормушаков, Наталия Сингатулина, Ксения Кузьмина, Анна Шуклина; лаборанты физической лаборатории Сергей Сиваков, Василий Эдель, Павел Пономарев, Алексей Понедельченко и главный научный сотрудник д.ф.-м.н. Сергей Таскаев.

7. При реализации проекта всегда придерживались позиции делать не то, что умеем, а то, что надо. В ускорительном источнике нейтронов

реализованы решения, позволяющие получить терапевтический пучок нейтронов, в наибольшей степени пригодный для БНЗТ. Об этом автор прямо говорил с трибун конгрессов по нейтрон-захватной терапии, и это нашло понимание у одного китайского физика, который приложил усилия к тому, чтобы первая китайская клиника была оснащена нашим источником нейтронов.

8. Когда мы впервые в мире, как мы думаем, решили проблему создания ускорительного источника нейтронов для БНЗТ, мы не стали ждать, что «его у нас с руками оторвут», а стали искать коллег для проведения дальнейших исследований. Так, с Университетом Цукуба (Япония) изучили влияние нейтронного облучения на клеточные культуры, с Институтом науки и технологий Окинавы (Япония) изучили радиационный блистеринг поверхности металла при имплантации протонов, со множеством организаций тестируем новые препараты адресной доставки бора, разрабатываем новые средства дозиметрии, с ветеринарными клиниками лечим домашних собак и кошек со спонтанными опухолями. Последнее, вероятнее всего, помогло с решением Правительства РФ внедрить БНЗТ в клиническую практику в Российской Федерации.

9. Постановлением Президиума Академии наук СССР №469 от 21.06.1957 вновь создаваемому в Новосибирске Институту ядерной физики утверждено 3 направления работ: протонный кольцевой ускоритель с энергией 50 ГэВ для изучения взаимодействия различных частиц высокой энергии, электронный циклический ускоритель с энергией 5 ГэВ для изучения структуры ядер и нуклонов и сильноточный линейный ускоритель протонов как мощный генератор нейтронов для изучения различных ядерных реакций. Нами ненароком выполнен последний пункт того первого постановления, касающегося нашего института.

## Глава 1

## ОСНОВЫ БОР-НЕЙТРОНОЗАХВАТНОЙ ТЕРАПИИ

Бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) [3–5] является формой бинарной радиотерапии, использующей уникально высокую способность нерадиоактивного ядра бор-10 поглощать тепловой нейтрон. Сечение реакции поглощения нейтрона с последующим, практически мгновенным распадом образованного в возбужденном состоянии ядра бор-11 на  $\alpha$ -частицу и ядро лития-7 приведено на рис. 1.1. Сечение этой реакции, записываемой как <sup>10</sup>В $(n, \alpha)^7$ Li, составляет величину 3835 б<sup>1</sup>) для теплового нейтрона<sup>2</sup>) и уменьшается обратно пропорционально с увеличением скорости нейтрона. Такая величина сечения в 3837 б действительно является большой — достаточно обратить внимание на представленный на этом рисунке график сечения упругого рассеяния нейтрона на ядре бор-10. Оно практически не зависит от энергии нейтрона и во много раз меньше — всего в районе 2 б.



Рис. 1.1. Зависимость полного сечения взаимодействия нейтрона с ядром бор-10 (1), в том числе упругого рассеяния (2) и реакции  ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  (3) от энергии нейтрона E (база данных ENDFB-VII.1)

 <sup>&</sup>lt;sup>1)</sup> б — сокращение от барн, единицы измерения площади; 1 б = 10<sup>-24</sup> см<sup>-2</sup>.
 <sup>2)</sup> Тепловым называют нейтрон с энергией 0,025 эВ, т. е. находящийся в тепловом равновесии со средой, имеющей комнатную температуру.

Сделаем небольшое отступление для того, чтобы дать общие сведения об основных процессах взаимодействия нейтрона с атомными ядрами и о принятой терминологии. Атомное ядро состоит из нуклонов — положительно заряженных протонов и нейтральных нейтронов, которые связаны между собой сильным взаимодействием. Количество протонов в ядре называется его зарядовым числом — это число равно порядковому номеру атома в таблице Менделеева, оно определяет химические свойства соответствующего элемента. Ядра с одинаковым числом протонов и разным числом нейтронов называются изотопами. Полное количество нуклонов в ядре называется его массовым числом и приблизительно равно средней массе атома, указанной в таблице Менделеева. Так, в ядре бора, пятом элементе таблицы Менделеева, содержится 5 протонов. Изотопов бора известно 14, из них только два стабильны: с пятью нейтронами (он обозначается <sup>10</sup>В) и с шестью (<sup>11</sup>В). Природный бор состоит из изотопа <sup>10</sup>В с концентрацией примерно 20 % и изотопа <sup>11</sup>В с концентрацией 80 %. Размер ядра, точнее, радиус действия ядерных сил, связан с массовым числом А простым соотношением  $r = 1,23 \cdot 10^{-13} A^{-1/3}$  см; геометрическое сечение ядра бора примерно равно 0,23 б. Большинство сечений ядерных реакций имеет значения порядка или меньше геометрических сечений ядер, однако есть реакции, сечения которых много больше геометрических сечений ядер.

Как видно из рис. 1.1 и 1.2, а, сечение упругого рассеяния нейтрона на боре несколько больше его геометрического сечения — примерно 2 б для <sup>10</sup>В и 5 б для <sup>11</sup>В. Такая величина сечения в несколько барн характерна для упругого рассеяния нейтрона на большинстве ядер: 1,5 б для <sup>27</sup> Аl, 10 б для <sup>56</sup> Fe, 11 б для <sup>208</sup> Pb. Но есть и исключения. Так, нейтрон с энергией 340 эВ с огромной вероятностью рассеивается на марганце ( ${}^{55}$ Mn,  $\sigma = 3177$  б, рис. 1.2, б), в то время как нейтрон с энергией 24,5 кэВ практически свободно пролетает сквозь железо  $({}^{56}$ Fe,  $\sigma = 0,0005$  б, рис. 2, в). Все потому, что эффективные сечения определяются не столько геометрическими размерами сложных микрочастиц, сколько волновыми свойствами частиц. При определенных условиях могут образовываться связанные состояния, что приводит к очень сложной картине поведения сечений в функции энергии достаточно посмотреть на рис. 1.2, б. в. Одно из таких связанных состояний, представленное на рис. 1.1, реализуется при взаимодействии нейтрона с ядром <sup>10</sup>В — оно приводит к поглощению нейтрона ядром бора с огромной вероятностью. Уменьшение сечения с увеличением скорости нейтрона указывает на то, что сечение процесса определяется дебройлевской длиной волны. При увеличении скорости нейтрона время его пребывания в поле действия ядерных сил и, следовательно, вероятность взаимодействия уменьшаются. Обратим внимание



Рис. 1.2. Зависимость сечения упругого рассеяния нейтрона  $\sigma$  на атомных ядрах  $^{11}$ B (*a*),  $^{55}$ Mn (*б*) и  $^{56}$ Fe (*в*) от энергии нейтрона *E* (база данных ENDFB-VII.1)

на то, что в то время как ядро <sup>10</sup>В с огромной вероятностью поглощает нейтрон с последующим распадом, с ядром <sup>11</sup>В такой реакции нет вплоть до энергии нейтрона 7,2 МэВ.

Вернемся к БНЗТ. Поглощение нейтрона ядром <sup>10</sup>В приводит к мгновенной ядерной реакции <sup>10</sup>В( $n, \alpha$ )<sup>7</sup>Li с выделением энергии 2,79 МэВ. В 6,1% случаев энергия распределяется только между ядром лития и  $\alpha$ -частицей, в 93,9% случаев ядро лития вылетает в возбужденном состоянии и испускает  $\gamma$ -квант с энергией 0,478 МэВ (рис. 1.3). Продукты ядерной реакции — ядро лития с энергией 0,84 МэВ и  $\alpha$ -частица с энергией 1,47 МэВ — характеризуются высоким темпом торможения (средние значения 162 и 196 кэВ/мкм соответственно) и малым пробегом этих частиц в воде или в ткани организма — 5,2 и 7,5 мкм (характерный размер клеток млекопитающих). Темп торможения  $\gamma$ -кванта существенно ниже, средняя длина свободного пробега его в воде составляет 10 см. Следовательно, выделение



Рис. 1.3. Схематическое изображение реакции  ${}^{10}B(n, \alpha)^7Li$ 

основной части энергии ядерной реакции  ${}^{10}B(n, \alpha)^7Li$ , а именно 84 %, ограничивается размером одной клетки. Таким образом, селективное накопление бора-10 внутри клеток опухоли и последующее облучение нейтронами должны приводить к разрушению клеток опухоли с относительно малыми повреждениями окружающих здоровых клеток. Эта основная идея БНЗТ была сформулирована Лочером <sup>1</sup>) в 1936 г. [6], вскоре после открытия Чадвиком <sup>2</sup>) нейтрона в 1932 г. [7] и описания Тэйлором и Голдхабером реакции  ${}^{10}B(n, \alpha)^7Li$  [5].

Следует отметить, что еще ряд ядер характеризуется большим сечением поглощения теплового нейтрона (табл. 1.1). Однако поглощение нейтрона большей частью из них —  $^{113}$ Cd,  $^{135}$ Xe,  $^{149}$ Sm,  $^{151}$ Eu,  $^{155}$ Gd,  $^{157}$ Gd,  $^{147}$ Hf,  $^{199}$ Hg — ведет к ( $n, \gamma$ )-реакции, которая не обеспечивает локальности выделения энергии из-за низкого темпа торможения  $\gamma$ -квантов. Пристальное внимание ряда исследователей было приковано к гадолинию-157. На первый взгляд применение этого изотопа гадолиния кажется более привлекательным, чем изотопа бор-10, из-за почти в 67 раз большей вероятности поглощения нейтрона, в 2,8 раза большего выделения энергии и того, что препараты с гадолинием широко используют в качестве парамагнитного контрастного вещества в магниторезонансной томографии. Однако из всей суммарной энергии

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) Gordon L. Locher, американский рентгенолог.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>) Сэр James Chadwick, английский физик, лауреат Нобелевской премии по физике за 1935 г.

Изотоп	Распространен- ность, %	Период полураспада	Вид реакции	Сечение, б	
<sup>3</sup> He	0,000013	Стабильный	(n, p)	5333	
<sup>6</sup> Li	7,5	Стабильный	$(n, \alpha)$	940	
<sup>10</sup> B	20	Стабильный	$(n, \alpha)$	3835	
<sup>113</sup> Cd	12	Стабильный	$(n, \gamma)$	20 600	
<sup>135</sup> Xe		9,14 ч	$(n, \gamma)$	2720000	
<sup>149</sup> Sm	14	Стабильный	$(n, \gamma)$	42 080	
<sup>151</sup> Eu	48	Стабильный	$(n,)\gamma$	9200	
<sup>155</sup> Gd	15	Стабильный	$(n, \gamma)$	61 100	
<sup>157</sup> Gd	15	Стабильный	$(n, \gamma)$	259 000	
<sup>174</sup> Hf	0,16	$2\cdot 10^{15}$ лет	$(n, \gamma)$	561	
<sup>199</sup> Hg	17	Стабильный	$(n, \gamma)$	2150	
<sup>235</sup> U	0,7	7 · 10 <sup>8</sup> лет	(n, f)	681	
<sup>241</sup> Pu		13,2 года	(n, f)	1380	
<sup>242</sup> Am		16 ч	(n, f)	8000	

Таблица 1.1. Изотопы с сечением поглощения теплового нейтрона более 500 б

распада в 7,937 МэВ только 63 кэВ от конверсионных и ожэ-электронов выделяется в размере менее 50 мкм. Основным же продуктом распада является жесткое  $\gamma$ -излучение [9] со средним пробегом в биологической ткани порядка 40 см. Таким образом, гадолиний-нейтронозахватная терапия не обеспечивает локальность выделения энергии — она обеспечивает только однородность дозы в достаточно большом объеме. Хотя в ряде проведенных предклинических исследований с применением гадолиния и отмечаются положительные результаты [9–15], реальная польза такого подхода для терапии злокачественных опухолей не показана.

Локальность могут обеспечить несколько  $(n, \alpha)$ - и (n, f)-реакций вследствие быстрого торможения образующихся  $\alpha$ -частиц или продуктов деления ядер. Но применение этих реакций практически не изучалось в силу казавшейся высокой токсичности лития <sup>1</sup>) или радиоактивности урана, плутония и америция. Основные экспериментальные работы и клиническое применение в нейтронозахватной терапии базируются на использовании бора.

Первое облучение нейтронами фрагментов опухоли с борной кислотой было проведено Крюгером в 1940 г. [16]. В 1951 г. важный результат был получен Свитом<sup>2</sup>) обеспечено селективное накопление бора в опухолевых клетках пациента [17, 18]. С этого времени началось клиническое применение БНЗТ.

В развитии методики БНЗТ выделяют четыре периода [3, с. 3].

Первый период связан с ранними клиническими испытаниями, проведенными профессорами Фарром <sup>3)</sup> и Свитом в США с 1951 по 1961 гг. на специально построенных ядерных реакторах в Брукхейвенской национальной лаборатории и Массачусетском технологическом институте [19, 20]. Эти испытания не продемонстрировали терапевтическую эффективность метода [21, 22]. Причина заключалась в слабой селективности и низкой концентрации бора, из-за чего «фоновое» облучение протонами отдачи и  $\gamma$ -квантами в результате реакций <sup>14</sup>N(n, p)<sup>14</sup>С и <sup>1</sup>H $(n, \gamma)$ <sup>2</sup>H было достаточно велико.

Второй период определили пионерские работы доктора Хатанака<sup>4</sup>) с сотрудниками, проведенные в Японии с 1968 по конец 1980-х гг. Хатанака стал применять внутриартериальную инжекцию боркаптата натрия<sup>5</sup>) (BSH), синтезированного Соловэй [23], проводить открытое облучение опухоли после хирургии и добился впечатляющих результатов — 5-летняя выживаемость составила 58 % для группы пациентов со злокачественными глиомами 3-й и 4-й градаций [24]. В 1987 г. Мисима<sup>6</sup>) осуществил лечение поверхностной злокачественной меланомы, применив борфенилаланин<sup>7</sup>) (BPA) [25].

Эти результаты дали толчок третьему периоду развития нейтронозахватной терапии — клиническим испытаниям глубинных внутримозговых опухолей с применением пучков эпитепловых нейтронов от ядерных реакторов. Терапия пациентов была проведена в Брукхейвенской национальной лаборатории [26] и в Массачусетском технологическом институте [27] в США, в Голландии [28], Финляндии [29],

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) См. главу «Литий-нейтронозахватная терапия» в данной монографии.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>) William H. Sweet, профессор.

<sup>&</sup>lt;sup>3)</sup> L.E. Farr, профессор.

<sup>&</sup>lt;sup>4)</sup> Hiroshi Hatanaka, профессор, нейрохирург.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>) Обогащен изотопом бор-10. Химическая формула: Na<sub>2</sub>B<sub>12</sub>H<sub>11</sub>SH.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>) Yutaka Mishima, профессор Университета Кобе (Япония), дерматолог.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>) Обогащенный изотопом бор-10 борфенилаланин в оптически изомерной форме L. Химическая формула: (HO)<sub>2</sub><sup>10</sup>B-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>-CH<sub>2</sub>CH(NH<sub>2</sub>)-CO<sub>2</sub>H.

Швеции [30], Чехии [31, 32], Японии [33], Аргентине [34] и Тайване [35]. БНЗТ была распространена и на другие заболевания, такие как опухоль шеи [36, 37], менингиома [38], мезотелиома плевры [39] и гепатоцеллюлярная карцинома [40]. Несмотря на предпринятые усилия и научный прогресс, внутренние проблемы привели к серьезному кризису. В ту пору только ядерные реакторы способны были производить требуемые пучки эпитепловых нейтронов. Однако функционирование этих установок сильно зависит от политической поддержки, и в силу разных причин все они прервали проведение терапии, за исключением установок Института реакторных исследований Университета Киото (Япония), Национального университета Цинхуа (Тайвань) и атомного центра Барилоче (Аргентина). Закрытие реакторов было обусловлено только политическими и экономическими причинами, а никак не клиническими результатами.

В настоящее время исследования по БНЗТ переходят в следующий период, связанный с использованием ускорителей заряженных частиц для получения пучков эпитепловых нейтронов. Проф. Зауэрвайн<sup>1)</sup> в заключении вводной главы книги 2012 г. [3, с.9] подчеркивает: «Ключевой фактор для успеха БНЗТ в первую очередь заключается в сотрудничестве специалистов различных дисциплин: ядерной физики, хирургии, химии, радиационной онкологии, математики, радиобиологии... Второй важный аспект состоит в наличии надежного источника нейтронов, размещаемого в клинике. До тех пор, пока технические проблемы не будут решены, не будет реального прогресса в БНЗТ. Аспект лекарственных препаратов, который раньше часто казался узким местом БНЗТ, менее важен. Два препарата, которые уже использовались в клинических испытаниях, а именно BSH и BPA, обеспечивают очень хороший градиент бора между некоторыми опухолями и окружающими нормальными клетками, чтобы планировать и продолжать клинические испытания» 2).

За десятилетие, последовавшее после выхода в свет книги [3], несколькими группами исследователей решена проблема создания надежного ускорительного источника нейтронов, размещаемого в клинике.

Так, первой страной, внедрившей ускорительный источник нейтронов в клиническую практику, стала Япония. С 1 июня 2020 г. в двух клиниках в г. Корияма и в г. Осака, оснащенных 30 МэВ 1 мА циклотроном компании Сумитомо (Япония) и бериллиевой мишенью, присту-

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) Wolfgang Sauerwein, профессор, отделение радиотерапии университета г. Эссена (Германия).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>) Перевод автора.

пили к лечению больных методом БНЗТ после успешного проведения клинических испытаний методики [41, 42].

С 9 октября 2022 г. к лечению больных приступили в Китае в БНЗТ центре г. Сямынь [43], оснащенном ускорительным источником нейтронов VITA — предметом данной монографии.

С 27 декабря 2022 г. проведение клинических испытаний методики начали в Южной Корее в клинике г. Инчхон, оснащенной 8 МэВ линаком с бериллиевой мишенью [44].

В ближайшее время еще в ряде стран, в том числе в Российской Федерации и в Италии, планируют приступить к лечению больных с применением ускорительного источника нейтронов VITA.

## Глава 2

## ИСТОЧНИКИ НЕЙТРОНОВ

Источниками нейтронов являются ядерные реакторы и ускорители заряженных частиц с нейтроногенерирующими мишенями.

В ядерных реакторах осуществляется управляемая самоподдерживающаяся цепная реакция деления ядер, сопровождаемая выделением энергии и нейтронов. При проведении клинических испытаний БНЗТ в качестве источников нейтронов применяли ядерные реакторы на тепловых нейтронах, в которых деление ядер <sup>235</sup>U индуцируется тепловыми нейтронами. Энергетический спектр испускаемых нейтронов хорошо описывается распределением  $F(E) = 0,77 \exp(-0,775E)$ . Спектр нейтронов простирается до 10 МэВ и имеет среднюю энергию около 2 МэВ.

Несмотря на то, что ядерные реакторы были использованы при проведении научных исследований по разработке методики БНЗТ, широкое внедрение БНЗТ в клиническую практику видится только с применением ускорителей заряженных частиц. Основных причин три: ускоритель безопаснее, его можно поставить в онкологическую клинику и с его применением можно получить пучок эпитепловых нейтронов лучшего качества.

Для получения нейтронов с помощью пучков заряженных частиц обычно используют ядерные реакции, в которых участвуют ядра со слабосвязанными нейтронами. С энергетической точки зрения есть два типа реакции. Экзотермические не требуют минимальной кинетической энергии частиц. Типичным примером является *d*-*d*-реакция, в результате которой образуются тритий и нейтрон. Энергетический выход реакции, т.е. разность энергий покоя частиц до и после реакции, составляет 3,265 МэВ. Это означает, что образующийся нейтрон имеет энергию 2,451 МэВ, если пренебрегать энергией дейтрона, и больше, если не пренебрегать. Видно, что энергия нейтронов здесь больше, чем средняя энергия нейтронов деления ядер. Другой тип реакции называется эндотермическим и требует минимальной пороговой энергии частиц. Вблизи порога энергия нейтронов очень мала, так что использование этих нейтронов для БНЗТ очень эффективно. Основные реакции генерации нейтронов следующие [45]:

$$\begin{split} T + p &\rightarrow {}^{3}\text{He} + n - 0,764 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{7}\text{Li} + p &\rightarrow {}^{7}\text{Be} + n - 1,646 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{9}\text{Be} + p &\rightarrow {}^{9}\text{B} + n - 1,851 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{45}\text{Sc} + p &\rightarrow {}^{45}\text{Ti} + n - 2,840 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{51}\text{V} + p &\rightarrow {}^{51}\text{Cr} + n - 1,536 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ d + d &\rightarrow {}^{3}\text{He} + n + 3,265 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ T + d &\rightarrow {}^{4}\text{He} + n + 17,588 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{7}\text{Li} + d &\rightarrow {}^{8}\text{Be} + n + 15,028 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{7}\text{Li} + d &\rightarrow {}^{24}\text{He} + n + 15,122 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{9}\text{Be} + d &\rightarrow {}^{10}\text{B} + n + 4,362 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \\ {}^{12}\text{C} + d &\rightarrow {}^{13}\text{N} + n - 0,282 \text{ M} \Rightarrow \text{B}. \end{split}$$

Сечения генерации нейтронов основных реакций представлены на рис. 2.1–2.3, выход нейтронов (из работы [46]) — на рис. 2.4, а в табл. 2.1 приведены основные параметры этих реакций [47–49].



Рис. 2.1. Зависимость сечения генерации нейтронов  $\sigma$  при взаимодействии протонного пучка с мишенями из трития, лития-7, бериллия-9 и ванадия-51 от энергии протонов E

В работе [47] отмечено, что наибольшее внимание сосредоточено на следующих четырех реакциях:  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ ,  ${}^{9}\text{Be}(p,n){}^{9}\text{B}$ ,  ${}^{9}\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$ ,  ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$ , из которых наилучшей признавалась  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$  из-за максимального выхода и минимальной энергии нейтронов. Однако создание литиевой мишени казалось проблематичным



Рис. 2.2. Зависимость сечения генерации нейтронов *σ* при взаимодействии дейтонного пучка с мишенями из дейтерия, трития, лития-6, лития-7 и углерода-13 от энергии протонов *E* (база данных ENDF/B-VII.1)



Рис. 2.3. Зависимость сечения генерации нейтронов  $\sigma$  при взаимодействии дейтонного пучка с углеродом-13 (база данных ENDF/B-VII.1) и углеродом-12 (результаты из трех источников; база данных Exfor) от энергии протонов *E* 

из-за низкой температуры плавления, низкой теплопроводности, высокой химической активности лития и из-за наработки радиоактивного изотопа <sup>7</sup>Ве. По прошествии 10 лет Крейнер в обзоре по ускорительным источникам нейтронов в книге [48] подчеркивает, что рассматривать следует только 3 реакции, которые обеспечивают генерацию нейтронов с энергиями ниже, чем получается на ядерных реакторах. Речь идет



Рис. 2.4. Выход нейтронов ряда реакций из толстых мишеней

о пороговых реакциях <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be, <sup>9</sup>Be(p, n)<sup>9</sup>B и <sup>12</sup>C(d, n)<sup>13</sup>N. Последняя из этих трех фактически не рассматривается из-за низкого выхода нейтронов (см. рис. 2.4). Из оставшихся двух по-прежнему подчеркивается привлекательность реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be, но уже отмечается, что проблемы литиевой мишени решены. Реакция <sup>9</sup>Be(p, n)<sup>9</sup>B также может использоваться, но для обеспечения сравнимого потока требуется бо́льшая энергия протонов, которая неизбежно влечет за собой увеличение энергии нейтронов. На рис. 2.1 приведены сечения реакций <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be и <sup>9</sup>Be(p, n)<sup>9</sup>B, из которых видно, что сечение реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be больше сечения реакции <sup>9</sup>Be(p, n)<sup>9</sup>B в три и более раз. Таким образом, наиболее эффективным методом создания интенсивных потоков нейтронов для БНЗТ является использование реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be.

Раз реакция  ${}^{7}$ Li $(p, n)^{7}$ Be в наибольшей степени подходит для БНЗТ, то именно ее и следует реализовать, несмотря на отсутствие к концу 1990-х гг. подходящих по параметрам ускорителей заряженных частиц и на мнение о невозможности создания литиевой мишени на требуемые параметры [47]. Так, было предложено создать новый тип ускорителя заряженных частиц — ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией,

Реакция	Энергия порога, МэВ	Энергия частиц, МэВ	Выход, н/мА·с	Энергия нейтронов, кэВ	
				max	min
$^{7}\mathrm{Li}(p,n)^{7}\mathrm{Be}$	1,880	1,880	0	30	30
		1,890	$6,3\cdot10^9$	67	0,2
		2,500	$9,3 \cdot 10^{11}$	787	60
		2,800	$1,4\cdot 10^{12}$	1100	395
${}^{9}\mathrm{Be}(p,n){}^{9}\mathrm{B}$		2,057	0	20	20
	2,057	2,500	$3,9\cdot10^{10}$	573	193
		4,000	$1 \cdot 10^{12}$	2120	
${}^{9}\mathrm{Be}(d,n){}^{10}\mathrm{B}$	0	0	0	3962	3962
		1,500	$3,3\cdot10^{11}$	4279	3874
$^{13}C(d, n)^{14}N$	0	0	0	4974	4974
		1,500	$1,9 \cdot 10^{11}$	6772	5616
$^{12}C(d, n)^{13}N$	0,327	0,327	0	4	4
		1,500	$6\cdot 10^{10}$	1188	707
$d(d,n)^3$ He	0	0	0	2451	2451
		0,120	$3\cdot 10^8$	2898	2123
		0,200	$1,1\cdot 10^9$	3054	2047
$t(d,n)^4$ He	0	0	0	14 050	14050
		0,150	$4,5\cdot 10^{10}$	14961	13305

Таблица 2.1. Основные параметры реакций генерации нейтронов

и тонкую литиевую мишень. Предваряя дальнейшее описание, можно сказать, что предложенные идеи принесли желаемый результат, правда не сразу, а после детального исследования и внесения большого количества изменений.

## Глава З

## УСКОРИТЕЛЬНЫЙ ИСТОЧНИК НЕЙТРОНОВ VITA

Ускорительный источник нейтронов VITA — современная физическая установка, включающая в себя: электростатический тандемный ускоритель заряженных частиц оригинальной конструкции, названный со временем ускорителем-тандемом с вакуумной изоляцией, для получения стационарного пучка протонов или дейтронов; оригинальную тонкую литиевую мишень для генерации нейтронов и ряд систем формирования пучка нейтронов с замедлителем из фторида магния, оргстекла или тяжелой воды [50]. Установка постоянно модернизировалась по мере получения знаний и к настоящему времени выглядит так, как показано на рис. 3.1.



Рис. 3.1. Схема ускорительного источника нейтронов VITA: 1 — ускорительтандем с вакуумной изоляцией (1а — источник отрицательных ионов, 16 – высоковольтный и промежуточные электроды, 1в — газовая обдирочная мишень, 1г — проходной изолятор, 1д — высоковольтный источник питания), 2 — поворотный магнит, 3 — литиевая нейтроногенерирующая мишень, 4 — система формирования пучка нейтронов. Литиевую мишень размещают в положениях *А*, *Б*, *В*, *Г* или *Д* 

В основном установка размещена в одном радиационно-защищенном бункере; в соседнем бункере размещают литиевую мишень с системой формирования пучка нейтронов, пригодной для терапии пациентов, либо гамма- или нейтронный спектрометр для проведения научных исследований.

Установка оснащена:

- современными средствами вакуумной откачки: криогенными насосами OnBoard и CRYO-TORR 400 (СТІ-Сгуодепісs, США), турбомолекулярными насосами Shimadzu (Япония) и Edwards (Япония), форвакуумными насосами Edwards (Япония);
- современными средствами питания, управления, сбора и хранения данных;
- магнитной линзой для фокусировки пучка отрицательных ионов на вход в ускоритель, корректорами положения пучка ионов, поворотным магнитом для направления пучка ионов вниз, разверткой пучка ионов по поверхности мишени;
- бесконтактным датчиком тока NPCT-CF4 (Bergoz, Франция) (рис. 3.2, *a*) и изготовленными вводимыми цилиндрами Фарадея (рис. 3.2, *б*) для измерения тока пучка ионов;



Рис. 3.2. Бесконтактный датчик тока (*a*), цилиндр Фарадея (*б*), охлаждаемая диафрагма (*в*)

- несколькими охлаждаемыми диафрагмами с термосопротивлениями (рис. 3.2, в) для предотвращения прожигания вакуумной камеры пучком ионов и для контроля положения пучка ионов;
- проволочным сканером (измерителем профиля пучка) OWS-30 (D-Pace, Канада) (рис. 3.3, а) для измерения профиля, положения и тока пучка отрицательных ионов в режиме реального времени;
- измерителем эмиттанса ES-4 (D-Pace, Канада) (рис. 3.3, б) для измерения фазового портрета пучка ионов;
- газоанализатором RGA300 (Stanford Research Systems, США) для определения количественного состава остаточного газа внутри вакуумной камеры ускорителя;



Рис. 3.3. Сканер OWS-30 (а), измеритель эмиттанса ES-4 (б)

- видеокамерами Hikvision (Китай) с размером пикселя 7 мкм и со светосилой объектива F = 1,2 для визуализации и контроля положения пучка ионов;
- длиннофокусным микроскопом КХ InfiniMax<sup>TM</sup>(США) для изучения взаимодействия протонного пучка с мишенью;
- телескопом Celestron Ultima 80-45 для визуализации положения и размера пучка ионов в газовой обдирочной мишени;
- тепловизорами FLIR T650SC (FLIR Systems Inc., США) и Optris PI640 (Германия), инфракрасным пирометром OPTCTL3MLSF-CTlaser 3ML (Optris, GmbH, Германия) для бесконтактного измерения температуры мишени или элементов установки;
- разработанным малогабаритным детектором с парой литиевых полистирольных сцинтилляторов, один из которых обогащен бором, для измерения борной дозы и дозы *γ*-излучения [51];
- дозиметрическим 3D фантомом для измерения пространственного распределения компонент доз в водном фантоме;
- литий-содержащим сцинтиллятором GS20 (The Saint-Gobain Crystals, США), смонтированным на фотоэлектронном умножителе Hamamatsu R6095 с высоковольтным источником питания MHV12-1.5K1300P (TRACO Electronics, Япония) для измерения потока нейтронов;
- набором активационных фольг SWX-1551 и SWX-1552 (Shieldwerx, США) для измерения спектра нейтронов;
- двумя спектрометрами γ-излучения СЕГ-1КП (Институт физико-технических проблем, Дубна) на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия (НРGе γ-спектрометр), NaI(Tl) и CaF<sub>2</sub> γ-спектрометрами (Азимут Фотоникс, Россия) для измерения потока и спектра γ-излучения;
- мобильным цифровым спектрометром-дозиметром нейтронного и γ-излучения SDMF-1608SN (ООО «Центр ΦЦП», Москва);

- спектрометром α-излучения на основе кремниевого детектора ПДПА1К и цифрового спектрометрического устройства ЦСУ1К (Институт физико-технических проблем, Дубна) для определения элементного состава тонких пленок методом спектроскопии ионного рассеяния и для измерения энергетического спектра α-частиц;
- дозиметром γ-излучения ДБГ-С11Д, устройством детектирования УДМН-100 и блоком обработки и передачи данных БОП-1М (ООО «Доза», Россия); дозиметром-радиометром ДКС-96 с блоками детектирования БДМН-96 и БДМГ-96 (ООО «Доза», Россия); γ-детекторами LB6500-3H-10 с блоком индикации Місго Gamma LB 112 (Berthold Technologies, Германия) для дозиметрии ионизирующего излучения и контроля за обеспечением радиационной безопасности персонала;
- радиометрической установкой РЗБ-05Д-01 для контроля за обеспечением радиационной безопасности персонала при проведении работ с открытыми источниками ионизирующего излучения;
- столом рентгенохирургическим МЕДИН-САФИС (Беларусь) для размещения клеточных культур, лабораторных и домашних животных;
- разработанным автоматизированным стендом напыления литиевого слоя контролируемой толщины на литиевую мишень;
- перчаточным боксом MB-200MOD (M-Braun, Германия) для хранения лития, подготовки лития к напылению и для изучения поверхности лития под микроскопом;
- атомно-эмиссионным спектрометром с индуктивно-связанной плазмой параллельного действия с аксиальным и радиальным обзорами плазмы ICPE-9820 (Shimadzu, Япония) для определения концентрации бора в клеточных культурах, органах лабораторных животных, в крови лабораторных и домашних животных;
- шкафом вытяжным, СО<sub>2</sub>-инкубатором Heracell, микроскопом медицинским инвертированным Olympus CKX41SF (Япония), центрифугой-ротатором Centrifuge 5702, системой высокой очистки воды Milli-Q Integral 3, магнитной мешалкой MSH-300 с подогревом, нагревателем DTU-2C, ламинаром С 1.2 СҮТОЅ, морозильником низкотемпературным Innova U101 (Великобритания), гомогенизатором под давлением EmulsiFlex C3 Avestin, облучателем бактерицидным Сибэст ОБП-6х30-450 и другим оборудованием для хранения и культивирования клеточных культур, пробоподготовки образцов к спектральному анализу, получения липосом;
- защитным заглубленным контейнером для выдержки и временного хранения активированных мишеней [52];

 волоконным иттербиевым лазерным маркером LaserScan F1 (ООО «Атеко-ТМ», Москва) для подготовки поверхности литиевой мишени.

Установка обеспечивает:

- получение мощного стационарного монохроматического пучка протонов или дейтронов с энергией, изменяемой в диапазоне от 0,3 до 2,3 МэВ, с током, изменяемым от 0,5 до 10 мА. Пучок ионов отличает высокая монохроматичность и стабильность энергии (0,1%) и высокая стабильность тока (до 0,4%). На выходе из ускорителя пучок ионов имеет диаметр 10±1 мм, расходимость ±1,5 мрад, нормализованный геометрический эмиттанс ε<sub>norm</sub> = 0,2 мм мрад;
- генерацию мощного потока нейтронов (до 2 · 10<sup>12</sup> с<sup>-1</sup>) и формирование пучка нейтронов различного энергетического диапазона: холодных, тепловых, эпитепловых, исключительно эпитепловых, моноэнергетичных, над-эпитепловых или быстрых;
- генерацию моноэнергетических фотонов с энергией 478 кэВ, 511 кэВ или 9,17 МэВ;
- получение α-частиц и позитронов.

Установка предложена в 1997 г., напряжение и пучок протонов получены в 2006 г., пучок нейтронов — в 2008 г., активное использование установки началось с 2014 г.

Поскольку установка новая и многие процессы неизвестны, пришлось провести множество научных исследований и внести в конструкцию источника множество изменений и модификаций. Зачастую представления о происходящих процессах кардинально изменялись после проведения исследований. Вместе с тем неизвестность и отсутствие данных позволяли предлагать и реализовывать решения, многим казавшиеся невозможными. По материалам проведенных исследований опубликовано более 100 научных статей, поэтому в монографии зачастую опущены детали экспериментов, с которыми можно ознакомиться в указанных статьях.

## Глава 4

## УСКОРИТЕЛЬ-ТАНДЕМ С ВАКУУМНОЙ ИЗОЛЯЦИЕЙ

Т.А. Быков, Я.А. Колесников, А.М. Кошкарев, Г.М. Остреинов, С.С. Савинов, И.Н. Сорокин, И.М. Щудло, С.Ю. Таскаев

Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией — это линейный электростатический ускоритель заряженных частиц тандемного типа оригинальной конструкции. В характеризации ускорителя термин «линейный» означает, что пучок ионов однократно проходит ускоряющие промежутки. Термин «электростатический» означает, что ускорение заряженных частиц происходит неизменным электрическим полем. Термин «тандемный» означает, что высоковольтный потенциал используется дважды: сначала для ускорения отрицательных ионов, а затем (после смены полярности их заряда в высоковольтном терминале) ускорения положительных ионов. Ключевым преимуществом концепции тандемного ускорения является снижение необходимого ускоряющего напряжения наполовину, что значительно упрощает электростатическую изоляцию и, следовательно, уменьшает размер и стоимость ускорителя. Оригинальность конструкции заключается в том, что здесь используют не традиционные ускорительные трубки, а электроды в виде вложенных друг в друга соосных цилиндров, которые крепят на единственном проходном изоляторе, как показано на рис. 4.1. Такая конструкция напоминает кочан капусты, где кочерыжка — это проходной изолятор, а листья — электроды, или русскую деревянную игрушку Матрешку. Основная идея состояла в том, чтобы отнести межэлектродные изоляторы подальше от пучка заряженных частиц для улучшения высоковольтной прочности, а в ускорительном зазоре обеспечить высокий темп ускорения ионов за счет близкого размещения электродов для увеличения тока пучка ионов.

#### 4.1. Конструкция ускорителя

Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией в ИЯФ СО РАН состоит из:

 вакуумного бака цилиндрической формы диаметром 1,4 м, высотой 2,3 м с отверстиями для ввода и вывода пучка ионов (сбоку),



Рис. 4.1. Общий вид электростатического 6-зазорного ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией: 1 — высоковольтный электрод ускорителя; 2 — высоковольтный электрод источника постоянного напряжения; 3 — жалюзи электродов-экранов; 4 — криогенный насос; 5 — вакуумный бак ускорителя; 6 — промежуточные электроды-экраны ускорителя; 7 — газовая обдирочная мишень; 8 — вакуумная часть проходного изолятора; 9 — газовая часть проходного изолятора; 10 — турбомолекулярный насос; 11 — внутренние коаксиальные цилиндры

для вакуумной откачки (сверху) и для подключения к высоковольтному источнику питания (снизу);

- высоковольтного и пяти промежуточных электродов цилиндрической формы, расположенных соосно с корпусом вакуумного бака. Диаметр высоковольтного электрода составляет 600 мм, диаметры промежуточных электродов 740, 870, 1000, 1130, 1260 мм. Площадь электродов, находящихся в вакууме под напряжением, составляет 41 м<sup>2</sup>. В электродах с двух сторон вварены рамки для крепления диафрагм и вставлены диафрагмы с отверстиями диаметром обычно 20 мм в тракте ускорения отрицательных ионов и в высоковольтном электроде и 30 мм в тракте ускорения положительных ионов. Диафрагмы расположены по диаметру соосно с входным и выходным фланцем ввода и вывода пучка ионов и формируют ускорительный канал;
- проходного изолятора, предназначенного для подачи потенциала на высоковольтный и промежуточные электроды от высоковольтного источника питания. На проходном изоляторе закреплены газовая обдирочная мишень, высоковольтный и промежуточные электроды;
- газовой обдирочной мишени, установленной внутри высоковольтного электрода соосно с ускорительным каналом и предназначенной для конверсии отрицательных ионов в положительные;
- источника отрицательных ионов водорода или дейтерия;
- высоковольтного источника питания секционированного выпрямителя промышленного ускорителя электронов серии ЭЛВ [53].

Установка оснащена средствами вакуумной откачки, питания, охлаждения, управления, сбора и хранения данных.

Поскольку установка новая, ее постоянно модифицировали после проведения научных исследований и получения новых знаний. Так, было изготовлено 4 версии проходного изолятора, 2 версии газовой обдирочной мишени, 4 версии узла для ввода пучка отрицательных ионов, 2 версии узла для вывода пучка положительных ионов, 2 версии источника отрицательных ионов, 2 версии поворотного магнита. Для удобства восприятия материала опишем кратко версии изделий без объяснения причин модификаций, которые будут даны ниже.

Проходной изолятор 1-й версии. Вакуумная часть проходного изолятора (рис. 4.2) собрана из 24 кольцевых стеклянных изоляторов высотой 35 мм диаметром 400 мм, вакуумно плотно стянутых с промежуточными электродами через индиевые уплотнители. Газовая часть проходного изолятора, расположенная в баке высоковольтного выпрямителя, состоит из 10 керамических колец диаметром 400 мм, высотой 60 мм и четырех колец высотой 30 мм, склеенных со своими



Рис. 4.2. Проходной изолятор 1-й версии

электродами. Распределение потенциала по электродам задается резистивным делителем, расположенным внутри верхней части проходного изолятора и снаружи нижней части газонаполненного проходного изолятора через систему внутренних коаксиальных цилиндров, соединяющих электроды одного потенциала нижней (газовой) и верхней (вакуумной) частей проходного изолятора. Общее сопротивление резистивного делителя напряжения составляет 1,8 ГОм. Резисторы, расположенные вокруг нижней газовой части проходного изолятора, распределяют потенциала на промежуточные ускоряющие электроды. Распределение потенциала на электродах вакуумной части изолятора, гальванически не связанных с коаксиальными трубками, задают резисторы, расположенные внутри вакуумной части проходного изолятора. Напряжение от высоковольтного источника питания на центральный электрод ускорителя подается по металлической трубе, стягивающей обе части проходного изолятора. Проходной изолятор 2-й версии. В 2012 г. индиевое уплотнение в вакуумной части проходного изолятора заменено на резиновое с доработкой уплотняющих фланцев.

Проходной изолятор 3-й версии. В 2015 г. стеклянные изоляторы заменены на керамические с гладкой боковой поверхностью. При этом, если в ускоряющем зазоре, формируемом стенкой вакуумного бака, оставили без изменения высоту и количество изоляторов, то в остальных пяти сократили число изоляторов в ускоряющем зазоре с четырех до двух, из-за чего высоту изоляторов увеличили с 35 до 73 мм. Такая модификация позволила исключить резистивный делитель, расположенный внутри верхней части проходного изолятора, являющийся источником тепла, что приводило к появлению течей, особенно часто при использовании индиевых уплотнений.

Проходной изолятор 4-й версии. В 2019 г. все керамические изоляторы с гладкой боковой поверхностью заменили на керамические изоляторы с гофрированной наружной поверхностью.

Газовая обдирочная мишень 1-й версии. Мишень выполнена в виде охлаждаемой цилиндрической трубки длиной 400 мм с диаметром отверстия 10 мм с напуском газа посередине.

Газовая обдирочная мишень 2-й версии. В 2011 г. мишень заменена на подобную с диаметром отверстия 16 мм.

Входной узел 1-й версии представляет собой вакуумный объем с неохлаждаемой диафрагмой для отделения ускорителя от тракта транспортировки пучка низкой энергии. В 2013 г. диафрагма была убрана.

Входной узел 2-й версии, установленный в 2014 г., оснащен охлаждаемой диафрагмой, криогенным насосом и металлической сеткой под отрицательным потенциалом, покрывающей стенку вакуумной камеры для подавления вторичной эмиссии электронов под действием вторичных положительных ионов.

Входной узел 3-й версии дополнен двумя патрубками для визуального наблюдения за диафрагмой первого ускоряющего электрода и проволочным сканером перед входной охлаждаемой диафрагмой.

Во входном узле 4-й версии патрубки для визуального наблюдения за диафрагмой первого ускоряющего электрода размещены под меньшим углом, что позволяет видеть диафрагму следующего электрода. Также добавлен патрубок для наблюдения за охлаждаемой диафрагмой, добавлен измеритель эмиттанса и реализована возможность оперативно менять охлаждаемые диафрагмы с разными диаметрами отверстий.

Выходной узел 1-й версии представляет вакуумный объем со средством вакуумной откачки. Выходной узел 2-й версии дополнен патрубком для визуального наблюдения за выходной диафрагмой ускоряющего электрода, газоанализатором и металлической сеткой под отрицательным потенциалом, покрывающей стенку вакуумной камеры для подавления вторичной эмиссии электронов под действием вторичных положительных ионов.

Источник отрицательных ионов 1-й версии — это пенинговский поверхностно-плазменный источник с инжекцией плазмы из полых катодов [54]. В течение его длительной эксплуатации до конца 2021 г. в конструкцию источника внесено несколько модификаций, увеличивающих срок службы и упрощающих эксплуатацию.

Источник отрицательных ионов 2-й версии — это модифицированный пенинговский поверхностно-плазменный источник с инжекцией плазмы из полых катодов, обеспечивающий больший ток ионов. Он установлен в начале 2022 г.

Поворотный магнит 1-й версии характеризуется радиусом поворота 45 см, напряженностью магнитного поля ~3 кГс и показателем спада 0,5 и обеспечивает одинаковую фокусировку протонного пучка в направлении вдоль и поперек магнитного поля.

Поворотный магнит 2-й версии, установленный в 2018 г., подобный, но имеет сквозные горизонтальные патрубки для размещения мишени и диагностических устройств.

## 4.2. Выбор количества электродов

Реализация схемы ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией по сравнению с традиционными ускорительными трубками приводит к значительному увеличению площади поверхности электродов и, как следствие, к значительному увеличению запасенной энергии в вакуумных зазорах — до нескольких десятков джоулей.

В ускорителе возможны в основном два типа пробоев: пробои конструктивной выходной емкости высоковольтного источника (пробои по «полному напряжению») и тренировочные пробои высоковольтных вакуумных зазоров. На режим тренировки последовательными пробоями и конечную электрическую прочность вакуумных зазоров существенно влияет энергия, запасаемая как в емкостях высоковольтных зазоров и связанных с ними емкостях других элементов ускорителя, так и в выходной емкости высоковольтного источника (~200 пФ). Перенапряжение на отдельных элементах ускорителя-тандема может привести к их последовательному пробою и к потере электрической прочности. Увеличение уровня перенапряжения на изоляторных кольцах, из которых собран проходной изолятор, может приводить как к пробою по поверхности изоляторов, так и к их электрическому старению и, как следствие, разрушению. Рассмотрены характеристики 4-, 6- и 12-зазорной схемы ускорителя и установлено, что при пробое по полному напряжению только в одном зазоре 12-зазорного ускорителя происходит возрастание напряжения на величину около 5%. На остальных зазорах всех рассмотренных вариантов напряжение при пробое меньше напряжения до пробоя. При пробое отдельных вакуумных зазоров напряжение на всех остальных зазорах возрастает максимально на 32, 30 и 29% для 4-, 6- и 12-зазорного ускорителя. Видно, что увеличение количества зазоров ведет к меньшим перенапряжениям при пробоях отдельных зазоров.

При эксплуатации ускорителя возможны пробои и других высоковольтных элементов. Такими элементами, включенными параллельно с каждым ускоряющим высоковольтным вакуумным зазором, являются изоляционные кольца проходного изолятора и цилиндрические коаксиальные трубы, соединяющие электроды вакуумной и газовой частей изолятора.

При потенциале высоковольтного электрода ускорителя-тандема 1 MB расчетная напряженность электрического поля по поверхности керамических колец в нижней части проходного изолятора составляет  $\sim 14$  кB/см. Такая напряженность поля не представляет опасности, поскольку внутренняя часть колец находится в среде элегаза под давлением 0,3 МПа и электрическая прочность по поверхности в таких условиях не менее 100 кB/см, а внешняя поверхность керамических колец изолятора работает под еще большим давлением элегаза, 0,8 МПа, и имеет еще больший запас электрической прочности.

Из практики известно, что первые поверхностные вакуумные пробои изоляторов высотой несколько сантиметров с хорошо экранированной тройной точкой проходят при напряженности 10 кВ/см [55]. Для достижения же напряженности в 12 кВ/см по вакуумной поверхности стеклянных изоляторов требуется их высоковольтная тренировка пробоями.

Напряженность в регулярной части газовых зазоров между цилиндрическими трубами, соединяющими электроды вакуумной и газовой части проходного изолятора, составляет около 100 кВ/см, что примерно в 2 раза меньше, чем пробивная напряженность газовых зазоров с электродами соответствующей площади при давлении газа 0,3 МПа [56].

Таким образом, первичный (или после длительной остановки) вывод ускорителя на рабочий режим будет сопровождаться тренировочными пробоями изоляционных колец по вакуумной поверхности. Эти пробои могут влиять на пробои остальных упомянутых высоковольтных элементов ускорителя-тандема.

Расчеты показывают, что при пробое любого изолятора напряжение на парном с ним возрастает вплоть до 1,9 раз. Таким образом, если пробивается одно из двух изоляторных колец, соединенных попарно с соответствующим газовым зазором, то из-за возрастания напряжения на втором кольце практически неизбежен его пробой, что эквивалентно пробою соответствующего газового зазора или соответствующего керамического изолятора. При пробое любого газового зазора между трубами проходного изолятора напряжение на парном с ним газовом зазоре возрастает в диапазоне от 1,3 до 1,7 раз, увеличивая вероятность пробоя парного зазора. Последовательный пробой парных газовых зазоров эквивалентен пробою соответствующего вакуумного ускоряющего зазора.

При пробое одного из вакуумных зазоров пробой любого соседнего с ним из-за малого возрастания напряжения на нем и большого запаса электрической прочности маловероятен. Но при этом из-за повышения напряжения на остальных вакуумных зазорах возрастет напряжение и на соответствующих им газовых зазорах и стеклянных изоляторах (максимально в 1,23 раза), что также увеличивает вероятность последовательного пробоя всех газовых зазоров проходного изолятора ускорителя.

Результаты анализа высоковольтной прочности вакуумных зазоров ускорителя по запасенной энергии и величине перенапряжения при пробоях позволяют отдать предпочтение 6- или 12-зазорному варианту ускорителя-тандема. Но более технологически простым и наименее дорогостоящим для производства представляется 6-зазорный вариант ускорителя.

## 4.3. Влияние запасенной энергии на электрическую прочность высоковольтного вакуумного зазора

В реализованном 6-зазорном ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией площадь электродов равна  $41 \text{ м}^2$ . Энергия, запасаемая в емкостях высоковольтных зазоров, имеет достаточно большую величину — 30 Дж. Известно [55], что пробой с выделяемой энергией более 10 Дж ведет к падению электрической прочности миллиметровых вакуумных зазоров. Другими словами, из-за повреждений поверхности электродов в результате пробоя становится невозможным подъем напряжения до прежнего уровня. Достоверных данных о высоковольтной прочности сантиметровых зазоров с большой запасенной энергией не удалось найти в литературных источниках, и перед проектированием ускорителя были проведены эксперименты на изготовленном однозазорном ускорителе, высоковольтный электрод которого площадью 0,71 м<sup>2</sup> аналогичен электроду ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией. Была изучена высоковольтная прочность зазора при изменении емкости, подключаемой к испытываемому зазору, и измерена зависимость темнового тока от напряженности электрического поля. Выяснено, что пробои с запасенной энергией до 50 Дж не снижают высоковольтной прочности зазора 45 мм и вплоть до напряженности электрического поля 60 кВ/см величина темнового тока приемлемо мала. Дополнительный напуск обдирочного газа до давления  $4 \cdot 10^{-2}$  Па не влияет на электрическую прочность зазора и на увеличение темновых токов. Эти результаты совместно с результатами рассмотрения динамики пробоев высоковольтных элементов [57] послужили основой проектирования ускорителя с запасенной энергией в зазоре 30 Дж и напряженностью 25 кВ/см. Подробно результаты исследования изложены в диссертационной работе [58].

# 4.4. Подъем напряжения на высоковольтных вакуумных зазорах ускорителя

В процессе сборки ускорителя все его элементы, находящиеся в вакууме под напряжением, тщательно очищают от пыли и загрязнений. Все электроды и сам вакуумный бак отдельно предварительно прогревают в электровакуумной печи до 400 °C. Перед подъемом напряжения проводят электровакуумный прогрев бака ускорителя до 110 °C с помощью нагревателей, намотанных на внешнюю поверхность вакуумного бака.

Подъем напряжения осуществляют сначала на каждом отдельном зазоре, а затем проводят их последовательное подключение и выход на полное напряжение. Для испытания как отдельных, так и последовательно подключаемых зазоров разработано и изготовлено специальное приспособление в виде двух перемещающихся по высоте штанг, закрепленных на изоляторе между высоковольтным электродом и стенкой бака высоковольтного выпрямителя.

Каждый из 6 вакуумных ускоряющих зазоров (совместно с соответствующими газовыми зазорами, стеклянными и керамическими изоляторами) испытывают на напряжение до 200 кВ. После проверки на электрическую прочность всех элементов отдельных ускоряющих зазоров ускоритель включали на полное напряжение. Подробно результаты исследования изложены в статье [59].

### 4.5. Темновые токи в вакуумных зазорах ускорителя

Проводимость вакуумного изоляционного промежутка может возникать при напряжении ниже пробивного [60]. Протекающие при этом темновые токи сильно зависят от напряженности на электродах и сравнительно медленно изменяются во времени, хотя могут наблюдаться и значительные скачкообразные изменения.

Сильная зависимость величины темновых токов и характера их изменения от условий эксперимента — одна из основных особенностей, затрудняющих их аналитическое описание. Темновые токи распределены по поверхности электрода неравномерно, их стабильность во времени и интенсивность зависят от многих факторов.

Темновые токи состоят в основном из электронов, хотя могут включать в себя и ионную составляющую, причем электронная составляющая, которая может быть обусловлена либо автоэмиссией с неровностей микрорельефа, либо (в случае присутствия ионной компоненты) эмиссией электронов при бомбардировании катода ионами, быстро возрастает с увеличением напряженности.

При длительном приложении постоянного напряжения возникают микроразряды — самогасящиеся маломощные импульсы тока продолжительностью  $10^{-4}$ – $10^{-1}$  с, повторяющиеся с частотой 0,1–100 Гц, появление которых сопровождается десорбцией адсорбированных молекул газа с поверхности электродов. При малых зазорах между электродами микроразряды возникают на фоне значительных темновых токов (до  $10^{-3}$  A), однако по мере увеличения межэлектродного промежутка до сантиметровых расстояний микроразряды возникают раньше заметных темновых токов. Возникновение микроразрядов между электродами сопровождается интенсивным газовыделением, поэтому при большой площади электродов может наблюдаться увеличение давления в вакуумном объеме. Стабилизация напряжения приводит к постепенному уменьшению десорбции, которая вновь может возрасти при дальнейшем подъеме напряжения. Для предотвращения возникновения разряда в десорбируемом газе скорость подъема напряжения ограничивают.

В ускорителе с рабочей напряженностью электрического поля 25 kB/cm при общей площади электродов в десятки квадратных метров и давлении остаточного газа  $10^{-3}-10^{-5}$  Па в межэлектродных промежутках неизбежно должны протекать темновые токи различной природы согласно работам [60–62]. Ввиду использования активного делителя напряжения на изоляторе для задания потенциала по электродам-экранам и малой (сотни микроампер) величины тока по этому делителю темновые токи в ускоряющих зазорах способны значительно повлиять на распределение потенциала вдоль ускорительного канала, а следовательно, и на транспортировку пучка. Возникает необходимость в оценке величины темновых токов и их распределения в ускоряющих зазорах.

Было изучено протекание темновых токов в ускорителе и сопутствующее этому процессу газоотделение и тормозное излучение. Выяснено,

что проведение часовой тренировки ускорителя снижает величину темновых токов с нескольких сот микроампер до приемлемых единиц микроампер, а мощность поглощенной дозы тормозного излучения с величины  $\sim 1$  мЗв/ч до  $\sim 10$  мкЗв/ч на расстоянии 2 м от ускорителя. Такое временное поведение темнового тока указывает на его природу он связан с десорбцией газа с поверхности электродов при подъеме напряжения. Также определено, что величина темновых токов в зазоре, одним электродом которого является «земляной» вакуумный бак ускорителя, в 2-3 раза больше величины темновых токов в других зазорах. Причина заключается в наличии в «земляном» электроде отверстий для ввода-вывода ионного пучка и отверстия для вакуумной откачки. Диаметры всех отверстий в этом электроде превышают величину зазора, и электрическое поле в области отверстий превышает поля «гладких» коаксиальных электродов остальных высоковольтных зазоров, повышая вероятность появления дополнительных токов. Также качество обработки поверхности стенки вакуумного бака ускорителя хуже качества остальных электродов из полированной нержавеющей стали. Подробно результаты исследования изложены в статьях [63, 64] и в диссертационной работе [58].

В 2011 г. было предложено и реализовано изменение, нацеленное на увеличение тока протонного пучка: в ускорительном тракте отрицательных ионов водорода увеличены отверстия входных диафрагм всех электродов с 20 мм до 58 мм в диаметре, за исключением высоковольтного электрода, в котором диаметр отверстия остался 20 мм. При увеличении апертуры ускорительного канала темновые токи с характерных значений 300 мкА через некоторое время возрастали до 3-4 мА. Возрастание тока сопровождалось примерно 2-кратным увеличением газоотделения, почти 100-кратным увеличением мощности дозы тормозного излучения и более жестким спектром фотонов (вплоть до 1 МэВ с максимумом в районе 400 кэВ). Выяснено, что при увеличении апертуры канала напряженность электрического поля острого края отверстия катодной части рамки крепления диафрагмы с радиусом закругления 0,3 мм, в которое вставляется диафрагма, возрастает на 20% с 42 до 51 кВ/см. Если при диафрагмах диаметром 20 мм эмитированные с этой поверхности электроны попадают только на следующий соседний электрод, то при диафрагмах диаметром 58 мм эмитированные электроны попадают непосредственно в ускорительный канал и далее — на высоковольтный электрод или обдирочную трубку. Протекание этого тока повлекло частичное расплавление диафрагмы высоковольтного электрода и напыление металла на катодную поверхность предыдущего электрода. Выяснено, что этот темновой ток не связан с десорбцией газа при подъеме напряжения, его природа автоэмиссия электронов с неровности микрорельефа. Возникновение
автоэмиссионного тока повышенной интенсивности безусловно опасно для ускорителя и требует проведения мер по его устранению. Такими мерами, которые позволили избавиться от темнового тока большой интенсивности, стали установка диафрагм с отверстиями диаметром менее 40 мм и закругление острого края отверстий катодной части рамки крепления диафрагм.

## 4.6. Увеличение напряжения ускорителя

Сразу после создания ускорителя на нем было получено напряжение 1 MB. Через год это напряжение стало рабочим, когда пробои проходят не чаще одного раза в час.

Увеличение напряжения до 1,15 МВ достижимо выдержкой под напряжением, когда осуществляют тренировку ускоряющих зазоров; со временем уменьшается остаточное давление, темновой ток и мощность дозы тормозного излучения. Однако величина темнового тока в ускоряющих зазорах остается значительной. Из-за относительно маломощного резистивного делителя напряжения возникает перераспределение потенциала промежуточных электродов, что приводит к увеличению напряженности электрического поля в отдельных ускоряющих зазорах и к высоковольтному пробою по поверхности изолятора. Наибольший урон состоял в выгорании резисторов делителя напряжения, размещенного внутри проходного изолятора, из-за провисания цепочек сопротивлений вследствие значительного выделяемого тепла в ограниченном пространстве. Также нагрев изолятора приводил к размягчению индиевых уплотнений и потере герметичности. Замена сопротивлений или уплотнений занимала длительное время, поскольку требовала полной разборки ускорителя и проходного изолятора.

Для решения проблемы с выгоранием резисторов предложено увеличить высоту отдельных изоляторов в два раза и избавиться от части омического делителя, находящегося внутри проходного изолятора, т.е. оставить в верхней вакуумной части проходного изолятора только электроды, электрически соединенные с электродами нижней газовой части внутренними коаксиальными металлическими трубами. Поскольку в проходном изоляторе также убирали ряд электродов изолятора, для сохранения общей высоты проходного изолятора требовалось увеличить высоту изоляторов с 35 до 73 мм. Увеличение их высоты приводит к увеличению напряжения на единичном изоляторе с 50 до 100 кВ. Это требовало экспериментальной проверки, для чего на специально созданном высоковольтном вакуумном стенде была изучена электрическая прочность керамических изоляторов с гладкой и ребристой наружной поверхностью. На обоих изоляторах получено требуемое напряжение 100 кВ. Тренировка изолятора с ребристой поверхностью проходила быстрее, а максимально достигнутое напряжение, при котором не происходит множественных пробоев: 140 кВ на изоляторе с ребристой поверхностью и 120 кВ на изоляторе с гладкой. Поскольку любой из них можно использовать для решения проблемы с выгоранием резисторов, размещенных внутри проходного изолятора, принято решение использовать керамические изоляторы с гладкой наружной поверхностью, поскольку они технологически более просты в изготовлении.

После установки в 2015 г. проходного изолятора 3-й версии и стандартной тренировки, проводимой после вскрытия на атмосферу, напряжение 1 MB было достигнуто без каких-либо отличий от процедуры, применяемой ранее. Это означает, что увеличение напряжения на единичном изоляторном кольце в два раза за счет увеличения высоты изоляторного кольца в два раза не приводит к каким-либо ограничениям в достижении требуемого напряжения или ухудшением его надежности. Выход на напряжение 1,15 MB достигнут тренировкой пробоями при поднятии напряжения до 1,2 MB, выстойкой под этим напряжением и снижением до рабочего. Проведенная модернизация позволила обеспечить длительную стабильную работу с напряжением до 1,15 MB с редкими пробоями.

Для изучения пробоев по поверхности керамических колец в нижнем конусе вакуумного бака ускорителя были просверлены два отверстия, в которые вварены патрубки с окнами. На один из патрубков установлена видеокамера, она смотрела на керамические изоляторы высотой 35 мм. На второй патрубок установлена галогенная лампа для подсветки. Фотографии пробоев по поверхности керамических колец проходного изолятора приведены на рис. 4.3. После пробоя на поверхности изолятора остается видимый трек (рис. 4.4). Стоит заметить, что молния может пройти совсем рядом с ранее образовавшимся треком, как это видно на рис. 4.3, *а*.

Изучение разрядов позволило установить, что перед вспышкой молнии в одном из ускоряющих зазоров загорается разряд с током от 1 до 3 мА. Протекание тока такой величины в зазоре приводит к уменьшению напряжения в этом зазоре и к увеличению напряжения в других ускоряющих зазорах, поскольку потенциал на промежуточные электроды задается относительно маломощным омическим делителем сопротивлением 1,8 ГОм. Стоит обратить внимание на то, что средняя напряженность электрического поля по поверхности изолятора составляет 14 кВ/см, что в 1,4 раза больше рекомендуемой для работы без пробоев. Естественно, что при загорании разряда в одном из зазоров в каком-либо другом напряженность электрического поля возрастает еще сильнее и происходит пробой.



Рис. 4.3. Фотографии пробоев по поверхности изолятора



Рис. 4.4. Гладкая керамическая поверхность до (*a*) и после тренировки со следами пробоев (*б*)

При получении пучка протонов и генерации нейтронов программное обеспечение системы управления и сбора данных установки автоматически восстанавливает параметры ускорителя за 10 с после пробоя. Такие пробои, приводящие к временному прекращению генерации нейтронов, происходят раз в 3–10 мин и (в принципе) могут не мешать при проведении терапии, но избавление от них желательно.

Для решения этой проблемы есть два пути. Первый — увеличить высоту отдельных изоляторов в 1,4 раза, что приведет к увеличению габаритов ускорителя и увеличению энергии, запасенной в ускоряющих зазорах. Второй — сделать поверхность вакуумной части керамических колец гофрированной. Конечно, гофрирование наружной поверхности изолятора приводит к увеличению пути вдоль поверхности и, как следствие, к уменьшению средней напряженности электрического поля по поверхности. Однако гофрирование также приводит к увеличению максимальной напряженности поля в некоторых местах, поскольку эквипотенциалы электрического поля в конструкции компактного ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией не перпендикулярны поверхности гладких керамических колец; так что не очевидно, какой эффект будет преобладающим.

Керамические кольца с ребристой наружной вакуумной поверхностью были изготовлены (рис. 4.5), и ими заменили гладкие керамические изоляторы в проходном изоляторе. Радиус ребер и впадин был выбран 1 мм (исходя из ранее полученных результатов [66]). Высота новых отдельных ребристых керамических изоляторов не изменилась. Общая высота проходного изолятора осталась прежней.



Рис. 4.5. Керамические изоляторы с ребристой наружной поверхностью высотой 35 мм (*a*) и 70 мм (б)

После установки проходного изолятора 4-й версии с наружной ребристой вакуумной поверхностью керамических колец и стандартной тренировки ускорителя напряжение 1 МВ было достигнуто за время, в два раза меньшее, и с меньшим количеством пробоев, чем на проходном изоляторе с гладкой керамической поверхностью. Рабочее напряжение 1,15 МВ получено также быстрее и с меньшим количеством пробоев.

Заметим, что если на изоляторе с гладкой поверхностью средняя напряженность электрического поля составляла величину 14 кВ/см, то на изоляторе с ребристой вакуумной поверхностью, с учетом увеличения ее длины на  $\pi/2$ , составила 8,4 кВ/см — величину, часто

приводимую в литературных источниках в качестве величины, обеспечивающей требуемую прочность. В то же время в некоторых местах напряженность электрического поля возросла до 21 кВ/см. Поскольку после модернизации ускоритель стал работать на напряжении 1,15 МВ без пробоев, это означает, что электрическую прочность ускорителя удалось повысить за счет уменьшения средней напряженности электрического поля по поверхности изолятора, хотя максимальная напряженность в некоторых местах возрасла.

После шести месяцев эксплуатации установки, в течение которых обеспечивалось получение пучка протонов и генерация нейтронов без пробоев, установка была разобрана. Обнаружено, что на ребристой вакуумной поверхности проходного изолятора следов от пробоев нет. Даже те редкие пробои, которые случались при подъеме напряжения и тренировке, вероятнее всего, не были связаны с пробоями по поверхности изолятора.

Таким образом, экспериментально установлено, что применение в проходном изоляторе единичных керамических колец удвоенной высоты с ребристой вакуумной поверхностью и отказ от использования части резистивного делителя внутри проходного изолятора оправдано — напряжение 1,15 МВ получено и надежность работы ускорительного источника нейтронов повышена. Подробно результаты исследования изложены в статье [65].

## 4.7. Обдирочная мишень

При проектировании тандемного ускорителя рассмотрены разные виды обдирочных мишеней и выбрана оптимальная для реализации. Подробное описание рассматриваемых мишеней и выбор оптимальной приведено в работе [67]. Твердые мишени в виде графитовой фольги непригодны из-за большого энергетического разброса пучка ионов после перезарядки и ограниченного срока жизни фольги. Жидкометаллическая мишень в виде дозвуковой струи лития представляется слишком сложной, и ее нагрев пучком ионов приводит к ее ускорению и существенному уменьшению плотности струи [68, 69]. Магниевая паровая мишень считается удачной для применения в низковольтных установках, но магний будет попадать в ускорительный тракт, оседать на поверхности электродов и снижать электрическую прочность вакуумных промежутков. Для перезарядки отрицательных ионов водорода с энергией 1 МэВ в протоны подходит практически любая газовая мишень, поскольку позволяет преобразовать почти 100 % пучка в протоны. Выбор аргоновой мишени обусловлен тем, что аргон инертный газ и, что наиболее важно, одноатомный — перезарядка не сопровождается диссоциацией аргона, приводящей к нежелательному нагреву и получению нежелательных продуктов диссоциации. В процессе исследований нами вместо аргона попробованы криптон, ксенон и случайно, из-за поломки редуктора — элегаз. Никаких преимуществ использования криптона или ксенона нами не обнаружено. Элегаз использовать нельзя, поскольку даже после кратковременной работы на поверхности ускоряющих электродов появились следы ржавчины.

Итак, в ускорителе используют газовую (аргоновую) обдирочную мишень. Она выполнена в виде охлаждаемой цилиндрической трубки с напуском газа посередине и установлена внутрь высоковольтного электрода на проходной изолятор. Фотография мишени с отверстием диаметром 16 мм и длиной 400 мм приведена на рис. 4.6. До 2011 г. на установке использовали подобную мишень с отверстием диаметром 10 мм.



Рис. 4.6. Фотография обдирочной мишени с отверстием 16 мм, установленной на проходной изолятор

Подача газа в обдирочную мишень осуществляется следующим образом. В высоковольтном электроде источника питания ускорителя расположены 5-литровый баллон аргона с газовым редуктором GCE, электромеханический клапан подачи газа, управляемый 27 В источник питания клапана, питаемый последней секцией высоковольтного выпрямителя, и прецизионный игольчатый натекатель. Между клапаном и натекателем расположен буферный объем. Поступление газа в него обеспечивается открыванием клапана в ручном режиме или с определенной частотой. Давление газа в буферном объеме определяется частотой открывания клапана, но не может превышать выходного давления редуктора. Обычно длительность открывания клапана устанавливают 160 мс, а выходное давление редуктора — 4 атм. Из буферного объема газ через прецизионный игольчатый натекатель поступает в обдирочную мишень по трубке длиной 2 м с внутренним диаметром 4 мм, расположенной внутри проходного изолятора. Характерное время вытекания газа составляет 500 с.

Для обдирочной трубки диаметром 16 мм, длиной 400 мм при температуре 300 К расход аргона с хорошей точностью линейно зависит от толщины мишени и может быть представлен следующим выражением:

$$Q \ [10^{18} \ \mathrm{c}^{-1}] = 2,63 \cdot n \cdot l \cdot [10^{16} \ \mathrm{cm}^{-2}]$$
  
или  $Q \ [\mathrm{mTopp} \cdot n \cdot \mathrm{c}^{-1}] = 75 \cdot n \cdot l \cdot [10^{16} \ \mathrm{cm}^{-2}]$ 

Для отрицательного иона водорода энергией 1 МэВ сечения процессов, связанные с его перезарядкой в аргоне, следующие [70]:  $\sigma_{-0} = 4,2 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$ ,  $\sigma_{0+} = 1,6 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$ ,  $\sigma_{-+} = 2,2 \cdot 10^{-17} \text{ см}^2$ ,  $\sigma_{0-} = 6 \cdot 10^{-21} \text{ см}^2$ ,  $\sigma_{+0} = 8 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$ ,  $\sigma_{+-} = 1,7 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$ . Равновесный выход протонов из аргоновой мишени составляет 99,9880%. Зависимости зарядового состава пучка и тока на выходе от линейной плотности аргона в мишени приведены на рис. 4.7; характерные значения — в табл. 4.1.



Рис. 4.7. Зависимость зарядового состава пучка (*a*) и тока на выходе (*б*) от линейной плотности аргоновой мишени

Таблица 4.1. Процентное содержание протонов и ток пучка на выходе из обдирочной мишени для некоторых значений ее толщины

Линейная плотность $nl$ , $10^{16}$ см $^{-2}$	0,32	1	1,7	2,1	3,1
Выход протонов, %	23	70	90	95	99
Ток пучка, %	0	70	90	95	99

Для выставления требуемой степени обдирки используют зависимость тока пучка ионов на выходе ускорителя, измеряемого цилиндром Фарадея, от величины газонапуска. Без напуска аргона ток пучка ионов отрицательный, поскольку инжектируемые отрицательные ионы сначала ускоряются до обдирочной мишени, а затем замедляются. При подаче аргона в мишень измеряемый отрицательный ток уменьшается, поскольку часть отрицательных ионов водорода в мишени становятся нейтралами или протонами. При достижении плотности аргоновой мишени 0.32 · 10<sup>16</sup> см<sup>-2</sup> (при напряжении 1 МВ. см. табл. 4.1) ток протонного пучка сравнивается с током отрицательных ионов водорода, и регистрируемый цилиндром Фарадея ток становится равным нулю. Регистрация момента перехода тока от отрицательных значений к положительным при изменении давления является полезной прямой диагностикой линейной плотности обдирочной мишени. При дальнейшем увеличении газонапуска регистрируемый положительный ток возрастает и выходит на насыщение. Для обеспечения требуемой степени перезарядки нужно подобрать такую частоту импульсов открывания клапана, которая обеспечит нулевой ток на выходе из ускорителя. Затем частоту импульсов увеличивают в соответствии с данными табл. 4.1 для обеспечения требуемой перезарядки пучка, например в 6,6 раза для обычно используемой 95 % перезарядки.

Дальнейшее увеличение напуска газа считается нецелесообразным, поскольку значительно сильнее, чем ток протонов, увеличивается паразитный ток вторичных заряженных частиц, образующихся в результате ионизации пучком ионов остаточного и обдирочного газа.

Неполная обдирка пучка отрицательных ионов обеспечивает возможность измерения степени обдирки мишени, если измерять поток нейтралов. Возможность измерения потока нейтралов обеспечена ионно-оптической системой ускорителя, которая формирует поток нейтралов в газовой обдирочной мишени в виде пучка, близкого к параллельному.

Для диагностики эффективности обдирки газовой обдирочной мишени за поворотным магнитом на горизонтальной части тракта установлен вдвижной цилиндр Фарадея в виде медного охлаждаемого конуса с металлическом кольцом под положительным потенциалом, обеспечивающим вытягивание электронов, испускаемых с медной поверхности цилиндра при ее бомбардировании нейтралами. При таких энергиях в основе кинетического выбивания электронов лежит процесс ударной ионизации атомов мишени, следовательно, коэффициент эмиссии не будет отличаться, бомбардируется ли поверхность металла протонами или атомами водорода, если их энергия одинакова. Поэтому была измерена вольтамперная характеристика при энергии протонов 1 МэВ и определено, что коэффициент ионно-электронной эмиссии, а следовательно, и коэффициент вырывания электронов под действием 1 МэВ нейтралов  $k = 0,29 \pm 0,02$ .

В случае когда поворотным магнитом отклоняют вниз пучок протонов и цилиндром Фарадея измеряют ток электронов, эмитированных нейтралами, программным образом с частотой дискретизации 1 Гц вычисляют эффективность обдирки газовой обдирочной мишени как  $\varepsilon = I_p/(I_p + I_{fc}/k)$ , где  $I_p$  — ток пучка протонов, измеряемый бесконтактным датчиком тока,  $I_{fc}$  — измеряемый ток в цепи цилиндра Фарадея, k = 0.29. Вычисленное значение эффективности обдирки газовой обдирочной мишени  $\varepsilon$  в режиме реального времени выводят на монитор пультовой установки в виде столбца с информацией о текущем значении є и в виде графика предыдущих значений с настраиваемой по длительности осью абсцисс и по величине осью ординат. Пример временной зависимости измеряемой эффективности обдирки газовой обдирочной мишени представлен на рис. 4.8. На графике можно видеть скачки уровня перезарядки пучка с периодом 25 с, которые обусловлены частотой открывания электромеханического клапана, регулирующего подачу газа в обдирочную мишень. На графике видно, что установка работает в стандартном режиме с эффективностью обдирки 95,5±0,5%.



Рис. 4.8. Зависимость эффективности обдирки пучка аргоновой мишени от времени

Газовая обдирочная мишень обеспечивает эффективную обдирку пучка отрицательных ионов, но формирует нежелательный пучок ионов аргона. Взаимодействие пучка ионов водорода с газовой мишенью приводит к частичной ионизации аргона, и внутри обдирочной трубки образуется слабоионизованная плазма. Поскольку электроны более подвижны, чем ионы аргона, для сохранения квазинейтральности плазма принимает положительный потенциал. Под действием положительного потенциала часть ионов аргона выходит из обдирочной трубки, попадает в ускорительный канал и формирует пучок ионов аргона. Простые оценки тока ионов аргона дают значения величин от соизмеримых до пренебрежимо малых по сравнению с током протонов. Достоверно оценить величину тока ионов аргона сложно из-за неоднородности конвертируемого пучка и вторичной плазмы вдоль мишени, возможности развития пучково-плазменной неустойчивости, проникновения электрического поля ускоряющих зазоров внутрь высоковольтного терминала и множества других параметров, которые достоверно не известны.

Для подавления проникновения ионов аргона в ускорительные зазоры предложено размещать перед обдирочной мишенью и после нее металлические кольца под отрицательным или положительным потенциалом либо отклонять пучок ионов магнитным полем внутри высоковольтного терминала [71–73].

Для измерения тока ионов аргона применен метод масс-спектроскопии. Внутрь поворотного магнита вставлена охлаждаемая диафрагма с щелью 5 × 20 мм. Диафрагма размещена на расстоянии 3,4 м от центра ускорителя. Измерения проведены при токе пучка протонов 760 ± 10 мкА, энергии 1,850 ± 0,002 МэВ, поперечном размере пучка порядка 1 см.

Поскольку масса иона аргона в 40 раз больше массы протона, а кинетическая энергия в два раза меньше, то ларморовский радиус иона в магнитном поле в  $\sqrt{20}$  раз меньше ларморовского радиуса протона, и поворотный магнит будет отклонять ионы аргона на угол, в  $\sqrt{20}$  раз меньший, чем угол отклонения протонов. Разделение компонентов пучка ионов отчетливо видно на поверхности литиевой мишени, когда взаимодействие ионов с литием приводит к люминесценции поверхности литиевой мишени, регистрируемой видеокамерой [74]. На рис. 4.9 приведены два примера изображения видеокамеры. Видно, что включение



Рис. 4.9. Изображение с видеокамеры, направленной на поверхность литиевой мишени, при токе поворотного магнита 0 А (слева), 14 А (справа): свечение, вызванное *1* — атомами водорода, *2* — ионами аргона, *3* — протонами

магнитного поля разделяет пучок на три компоненты: поток атомов водорода 1, пучок ионов аргона 2 и пучок протонов 3. Для удобства визуального сравнения цвета изображений частично инвертированы.

Сценарий измерения тока ионов аргона состоял в том, чтобы, разместив диафрагму ниже оси ускорителя, магнитным полем поворотного магнита направить в отверстие диафрагмы пучок ионов аргона, а пучок протонов отклонить ниже. Действительно, при токе 68,5 А в катушке поворотного магнита через диафрагму проходит только пучок ионов аргона, который, попадая на литиевую мишень, вызывает характерную люминесценцию, регистрируемую видеокамерой. При токе 14 А в катушке поворотного магнита на поверхности литиевой мишени визуально видны пучок аргона и пучок протонов, а при токе 68,5 А пучка протонов нет — видны только пучки ионов аргона и атомов водорода (рис. 4.10).



Рис. 4.10. Изображение с видеокамеры, направленной на поверхность литиевой мишени (1 — пучок атомов водорода, 2 — пучок ионов аргона, 3 — пучок протонов): *a*) при токе в катушке поворотного магнита 14 A, *б*) 68,5 A, *в*) 68,5 A при удвоенном газонапуске

В таком режиме при токе 68,5 А измерен ток заряженных частиц, проходящих через отверстие в диафрагме и попадающих на поверхность литиевой мишени; он составил  $150 \pm 70$  нА. Ток измерен омическим делителем напряжения, подключенным к мишенному узлу, электрически изолированному от установки. Если бы не визуализация

пучка ионов аргона по его люминесценции на поверхности литиевой мишени, то столь малую величину регистрируемого тока можно ошибочно посчитать за шум.

Полученный результат оказался неожиданным, поскольку ранее предполагали, что ток ионов аргона, конечно, меньше тока протонов, но не настолько. Так как максимальный ток протонов, проходящий через щелевое отверстие диафрагмы, равен  $286 \pm 3$  мкА, полагая размеры пучков ионов аргона и протонов равными, получим, что ток ионов аргона в 2000 раз меньше тока протонов. При такой величине тока пучок ионов аргона не представляет опасности ни в качестве источника дополнительного нагрева литиевой мишени, ни как дополнительная нагрузка высоковольтного источника питания; потому он не требует применения средств для своего подавления.

Достоверность полученного результата подтвердим дополнительным экспериментом и оценкой.

С этой целью увеличим в два раза частоту открывания клапана, подающего аргон в обдирочную мишень. Бо́льшая подача обдирочного газа, как и должно быть, приводит к увеличению тока ионов аргона до  $670 \pm 150$  нА и более интенсивной люминесценции, что видно из сравнения изображений на рис. 4.10. Также бо́льшая подача газа приводит к лучшей обдирке пучка отрицательных ионов водорода, что влечет за собой уменьшение потока атомов водорода, видимое из сравнения изображений на рис. 4.10. Обратим внимание на то, что двукратное увеличение подачи аргона в обдирочную мишень приводит к почти четырехкратному возрастанию тока ионов аргона, что возможно, поскольку истечение ионов из обдирочной мишени зависит от многих процессов и параметров. Но даже в этом случае ток пучка ионов аргона очень мал по сравнению с током протонов.

Оценим вклад отклоненного пучка протонов в измеренную величину 150±70 нА. Для этого необходимо определить профиль пучка протонов, а это сложна задача, принимая во внимание большую мощность пучка протонов. Поперечный размер пучка протонов оценили в 1 см; это значение принимали в расчет при разработке диагностики измерения тока ионов аргона.

Изменяя ток катушки поворотного магнита, проведем сканирование пучка заряженных частиц. Результат хордовых измерений пучка протонов представлен на рис. 4.11. Здесь по оси абсцисс отложено пересчитанное для протонов поперечное смещение.

Впишем в измеренную зависимость тока протонов распределение Гаусса  $(r) = \frac{j_0}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}\right)$ , где  $\sigma = 4,8$  мм,  $x_0 = 0,61$  мм. Экстраполируя его на координату 28 мм, соответствующую току 68,5 А в катушке поворотного магнита, получим, что в измеренную величину



Рис. 4.11. Зависимость тока пучка протонов, прошедших через щель, от их отклонения на приемнике пучка (точки с погрешностями) и гауссово распределение, аппроксимирующее зависимость (сплошная линия)

 $150 \pm 70$  нА протоны могут давать вклад, равный 19 нА. Реально этот вклад существенно меньше, так как на периферии плотность тока протонов спадает быстрее, чем распределение Гаусса, что видно на рис. 4.11. Это обусловлено сильной фокусировкой пучка отрицательных ионов водорода в ускоритель, действием пространственного заряда [75] и малым размером отверстий в ускоряющих электродах ускорителя. Некоторое отличие профиля тока от распределения Гаусса в приосевой области пучка протонов, ранее обнаруженное и непринципиальное для полученного результата, обусловлено искажением электрического поля в ускорителе из-за несоосности электродов и неидеальности их формы.

Теперь обратим внимание на то, что все вышеперечисленные оценки тока ионов аргона приведены при негласном предположении о том, что размер пучка ионов аргона равен размеру пучка протонов, что в общем случае совсем не очевидно. Более того, методом численного моделирования, задавая некоторые начальные условия, можно получать размер пучка ионов как несколько меньший размера пучка протонов, так и значительно больший, вплоть до того, что значительная часть ускоряемых ионов аргона попадает на промежуточные неохлаждаемые электроды ускорителя и греет их.

Малый размер пучка ионов аргона получается в случае, если считать, что энергия ионов аргона, вытекающих из газовой обдирочной мишени, мала и они «засасываются» электрическим полем в ускорительные зазоры в виде тонкой струи с малым поперечным размером, ускоряются, а на выходе дефокусируются выходной электростатической линзой, причем слабее, чем протоны, поскольку их энергия в 2 раза меньше.

Большой размер пучка ионов аргона получается в том случае, если считать, что энергия ионов аргона, вытекающих из газовой обдирочной мишени, порядка или более 10 эВ и их угловое распределение широкое. В этом случае ионы, вылетающие под большим углом к оси ускорителя, «засасываются» электрическим полем с периферии, ускоряются уже внутри высоковольтного электрода и фокусируются на малое расстояние. Все это приводит к формированию такого широкого пучка ионов аргона, что он обрезается всеми диафрагмами промежуточных электродов ускорителя и далее охлаждаемыми диафрагмами в тракте транспортировки пучка. Пример такого расчета траекторий ионов аргона представлен на рис. 4.12. На нем видно, как ионы аргона, выходящие из газовой обдирочной мишени с энергией 10 эВ и равномерным распределением по углу, фокусируются электрическим полем, проникающим внутрь высоковольтного электрода и далее ускоряются в виде широкого пучка, часть которого попадает на диафрагмы промежуточных электродов ускорителя.



Рис. 4.12. Моделирование транспортировки ионов аргона, вылетающих из газовой обдирочной мишени с энергией 10 эВ и равномерным распределением по углу

Для выяснения того, какой из случаев реализуется в действительности, проведены следующие исследования.

Во-первых, если пучок широкий, как во втором рассмотренном случае, то он должен нагревать неохлаждаемые диафрагмы промежуточных электродов, но этого нет. Зрительной трубой смотрели вдоль тракта ускорителя и видели края всех диафрагм высоковольтного и промежуточных электродов в тракте ускорения протонов. Для обнаружения эффекта увеличили ток пучка протонов до 5 мА и в 3 раза по сравнению с обычным режимом увеличили газонапуск. Никакого видимого нагрева диафрагм электродов не увидели.

Во-вторых, обратили внимание на то, что при подъеме напряжения в ускорителе мощность, снимаемая с входной охлаждаемой диафрагмы ускорителя, увеличилась на 20 Вт, что может быть связано только с появлением вторичного потока положительных ионов навстречу ускоряемому пучку (3 мА) отрицательных ионов. Эта мощность в 20 Вт много меньше мощности пучка протонов в 6 кВт, а с учетом того, что, как отмечено в работе [76], основной вклад в этот поток вторичных частиц дают положительные ионы, ионизованные в первом ускоряющем зазоре ввиду его относительно большого размера и относительно малой скорости отрицательных ионов водорода, ток ионов аргона если и есть, то очень мал.

Детальное рассмотрение процесса вытягивания ионов аргона из высоковольтного электрода в ускорительный зазор установило: если бы диафрагма на высоковольтном электроде была тонкая, как на других электродах, то электрическое поле ускорительного зазора достаточно хорошо проникало бы внутрь высоковольтного электрода (рис. 4.13, *a*) и могло приводить к такому распространению пучка ионов аргона, как показано на рис. 4.12. В действительности диафрагма высоковольтного электрода ускорителя с отверстием диаметром 2 см сделана не тонкой, а в виде трубочки длиной 3 см (рис. 4.13, *б*).

Такая геометрия диафрагмы кардинально подавляет проникновение электрического поля ускорительного зазора внутрь высоковольтного электрода и предотвращает широкое распространение пучка ионов аргона.

И наконец, третье исследование, показывающее, что размер пучка ионов аргона сравним с размером пучка протонов в месте измерения, оцифровка люминесценции поверхности литиевой мишени под действием пучков протонов и ионов аргона в проведенном исследовании.

Таким образом, установлено, что плотность тока ионов аргона на расстоянии 343 см от центра ускорителя в 2000 раз меньше плотности тока пучка протонов. Поскольку поперечные размеры пучков сравнимы, ток пучка ионов аргона много меньше тока пучка протонов. Этот факт низкой величины тока сопутствующего пучка аргона чрезвычайно важен для ускорителя, поскольку не требует реализации средств его подавления и не влияет на работу ускорителя.

Простой полезной диагностикой контроля положения и размера пучка протонов стало использование телескопа Celestron Ultima 80-45, направленного внутрь газовой обдирочной мишени вдоль горизонтальной оси ускорителя через медное охлаждаемое зеркало, установленное



Рис. 4.13. Ускорение ионов аргона: с тонкой диафрагмой высоковольтного электрода (a), с диафрагмой в виде трубочки длиной 3 см ( $\delta$ )

за поворотным магнитом. Чертеж и фотография установленного телескопа показаны на рис. 4.14, *a*, *б*. Полученное телескопом изображение представлено на рис. 4.14, *в*.

Видно, что пучок ионов идет по центру и его диаметр 4 мм. Такой же размер получается при измерении фазового портрета пучка нейтралов с помощью подвижного коллиматора и проволочного сканера на расстоянии 1,86 м от центра ускорителя за поворотным магнитом. Метод измерения подробно описан далее при характеризации пучка протонов. При измерении фазового портрета пучка нейтралов пучок протонов отклоняют вниз поворотным магнитом, а на металлические кольца у проволочного сканера подают не отрицательное, а положительное напряжение для вытягивания эмитированных электронов.



Рис. 4.14. Схема размещения охлаждаемого металлического зеркала (*a*), фотография установленного телескопа (*б*) и получаемое изображение (*в*); пунктирный круг обозначает диаметр 5 мм, диаметр трубки обдирочной мишени 16 мм

В месте измерения размер потока атомов водорода составляет 6–6,5 мм, его расходимость 1,9–2,4 мрад.

## 4.8. Увеличение тока пучка протонов

При проектировании ускорителя методом численного моделирования показана возможность пропускания пучка отрицательных ионов водорода через перезарядную трубку в предположении отсутствия влияния пространственного заряда [2].

Затем в работе [77] проведен анализ возможных схем согласованного ввода пучка в ускоритель, позволяющих с минимальными потерями ускорять и проводить пучок сквозь перезарядную трубку. Рассматривали следующие два способа транспортировки ионного пучка от источника до ускорителя: с помощью аксиальных электростатических линз с торможением пучка и с помощью аксиальных магнитных линз.

Каждый из указанных способов имеет свои преимущества и недостатки. Безусловное достоинство электростатических линз — их малое энергопотребление. Однако, чтобы обеспечить требуемую фокусировку ионного пучка, приходится проводить его глубокое торможение в линзе с 23 кэВ до 1–2 кэВ. При этом пучок под действием сил пространственного заряда значительно расширяется и может занимать бо́льшую часть апертуры линзы. Это приводит к появлению сильных аберраций и к трудностям его согласованного ввода в ускоритель и проводки сквозь узкую перезарядную трубку. Кроме этого, использование электростатических линз приводит к исчезновению уже после первой линзы такого важного свойства непрерывного пучка отрицательных ионов водорода, как компенсация пространственного заряда пучка за счет ионизации остаточного газа. В результате необходима дополнительная фокусировка пучка ионов для компенсации сил пространственного заряда. Отметим, что полная компенсация при этом невозможна вследствие неоднородного распределения плотности заряда пучка после прохождения им глубоко тормозящей электростатической линзы.

Магнитные линзы позволяют транспортировать полностью скомпенсированный пучок отрицательных ионов водорода с постоянной энергией. В результате его максимальный размер и оптические свойства канала слабо зависят от тока пучка. Кроме этого, магнитные линзы имеют такое важное преимущество перед электростатическими линзами, как возможность подбирать их оптимальное положение без изменения конструкции канала.

Вследствие таких достоинств, как возможность транспортировать скомпенсированные пучки ионов высокой интенсивности и подбирать оптимальное положение фокусирующих элементов без изменения конструкции канала, выбрано решение использовать магнитные линзы.

Образующаяся на входе в ускоритель электростатическая фокусирующая линза имеет фокусное расстояние, сравнимое с размером межэлектродного зазора. Согласованный ввод пучка в ускоритель с использованием магнитных линз возможен в двух режимах: «жесткой» и «мягкой» фокусировки пучка.

В схеме с «жесткой» фокусировкой компенсация фокусирующего действия входной электростатической линзы достигается за счет впуска в ускоритель сильно расходящегося ионного пучка малого радиуса. Такой пучок можно получить только путем его перефокусировки с помощью магнитной линзы непосредственно перед входом в ускоритель. Недостатки такой схемы — заметное увеличение эмиттанса пучка на входе в ускоритель за счет нелинейного действия сил пространственного заряда и большая чувствительность его коэффициента прохождения и выходных параметров как к углу разлета, так и к осевой координате точки перефокусировки пучка на входе в ускоритель. В то же время достоинство такой схемы — слабая зависимость радиуса пучка в перезарядной трубке и его коэффициента прохождения сквозь трубку от тока пучка. Это позволяет без проблем проводить через ускоритель пучки разной интенсивности.

В схеме с «мягкой» фокусировкой действие первой линзы ослабляется за счет плавного нарастания электрического поля на входе в ускоритель. При этом угол наклона огибающей пучка в этой области близок к нулю, а радиус пучка подбирается таким, чтобы фокусирующее действие слабой электростатической входной линзы почти компенсировалось расталкивающим действием поперечных сил пространственного заряда пучка (его равновесный радиус). Недостаток такой схемы — сильная зависимость равновесного входного радиуса пучка, а следовательно, и радиуса пучка в перезарядной трубке от тока пучка. В то же время достоинствами этой схемы по сравнению с «жесткой» фокусировкой являются существенно меньшее увеличение эмиттанса пучка на входе в ускоритель за счет ослабления действия сил пространственного заряда и меньшая чувствительность коэффициента прохождения сквозь трубку и выходных параметров пучка от угла его сходимости на входе в ускоритель. Для пучка с однородным радиальным распределением плотности тока можно найти аналитические распределения потенциала и поля, которые обеспечивают его ускорение при постоянном радиусе.

В целом, описанные выше схемы ввода пучка в ускоритель с «жесткой» и «мягкой» фокусировкой дополняют друг друга, незначительно отличаясь в геометрии ионно-оптического тракта. Поэтому при разработке окончательной геометрии ионно-оптического тракта было решено обеспечить возможность проверить экспериментально как «жесткую», так и «мягкую» фокусировку пучка, но фактически остановились на использовании только «жесткой» фокусировки магнитными линзами.

Пучок отрицательных ионов водорода с энергией до 23 кэВ получают в поверхностно-плазменном источнике, использующем пеннинговский разряд с полыми катодами. Выходящий из источника пучок ионов поворачивается в магнитном поле источника на угол 15° и фокусируется магнитной линзой на вход в ускоритель (фактически перефокусируется). Такой сильно расходящийся пучок ионов с малым начальным радиусом затем фокусируется сильной входной электростатической линзой ускорителя так, что в ускорительном канале пучок ионов близок к параллельному. В ускорителе пучок отрицательных ионов ускоряется до 1 МВ. В газовой обдирочной мишени, установленной внутри центрального высоковольтного электрода, отрицательные ионы водорода конвертируются в протоны, которые тем же потенциалом 1 МВ ускоряются до энергии 2 МэВ и далее транспортируются до нейтроногенерирующей мишени.

В такой конфигурации в ускорителе с момента запуска в 2006 г. и в течение нескольких лет получали пучок протонов, но его ток был в 100 раз меньше ожидаемого — на уровне 100 мкА.

**Первая модификация**, проведенная в 2011 г., состояла в том, что газовую обдирочную мишень с диаметром отверстия 10 мм заменили на новую с диаметром отверстия 16 мм, но это не привело к увеличению тока пучка протонов.

Вторая модификация, проведенная в том же году, состояла в увеличении диаметров отверстий диафрагм в ускоряющих зазорах, но это привело только к повреждению установки из-за возникшего автоэмиссионного тока (описано в разделе «Увеличение напряжения ускорителя»).

**Третья модификация** в 2013 г., которая также не привела к увеличению тока, зато обеспечила возможность длительной работы, заключалась в том, что убрали неохлаждаемую диафрагму, отделяющую тракт транспортировки пучка ионов низкой энергии от ускорителя. Выяснено, что диафрагма нагревалась инжектируемым пучком, с нее имитировались электроны, которые попадали на первый ускоряющий электрод и заметно понижали его потенциал. Как только входная диафрагма была убрана, эффект «подсадки» потенциала первого ускоряющего электрода пропал и стало возможным в течение длительного времени осуществлять ввод пучка отрицательных ионов водорода в ускоритель и его ускорение в нем.

Четвертая модификация в 2013 г. состояла в изменении сценария ввода пучка в ускоритель. Как только перестали доверять результатам численного моделирования в предположении отсутствия действия пространственного заряда и стали фокусировать пучок ионов, ориентируясь на показания вакуумной лампы, дозиметра и потенциала первого ускоряющего электрода, так сразу на порядок увеличили ток пучка протонов: с 100–200 мкА до 1,6 мА. Этому предшествовал эксперимент по измерению поперечного размера пучка ионов многоканальным детектором пучка, установленным перед входным отверстием первого ускоряющего электрода ускорителя. Было найдено, что при сильной фокусировке пучка экспериментально измеренные и расчетные данные достаточно сильно отличаются, что могло объясняться отсутствием полной компенсации пространственного заряда.

**Пятая модификация**, проведенная в 2015 г., позволила увеличить ток пучка протонов до 5 мА за счет кардинального подавления потока вторичных заряженных частиц. Остановимся на ней подробнее.

Очевидным процессом, приводящим к рождению вторичных заряженных частиц в ускоряющих зазорах, является ионизация ионами остаточного и обдирочного газов. Образовавшиеся электроны ускоряются электрическим полем в направлении высоковольтного электрода, в то время как образовавшиеся положительные ионы ускоряются в обратном направлении — к стенкам заземленного вакуумного бака. Электроны преимущественно попадают на стенки газовой обдирочной мишени, генерируя тормозное излучение, положительные ионы преимущественно попадают на стенки вакуумного бака, приводя к эмиссии электронов, которые ускоряются в ускоряющем зазоре. Результаты измеренной зависимости тока протонов и тока вторичных заряженных частиц от напряжения ускорителя, полученные при неизменном токе инжекции отрицательных ионов водорода, приведены на рис. 4.15. Видно, что при увеличении напряжения с 400 кВ до 1 МВ ток протонного пучка увеличивается с 500 до 850 мкА, в то время как ток вторичных заряженных частиц уменьшается с 750 до 500 мкА. При напряжении 600 кВ были ухудшены вакуумные условия путем отсечки откачки криогенном насосом (объем продолжал откачиваться турбомолекулярным насосом), и ток протонного пучка уменьшился на треть, в то время как ток сопутствующих частиц увеличился в 2 раза.

Видно, что ток вторичных заряженных частиц сравним по величине с током протонов и его, конечно, надо уменьшать. В частности, при напряжении 1 МВ ток вторичных заряженных частиц составляет



Рис. 4.15. Зависимость тока протонного пучка (*a*) и тока вторичных заряженных частиц (*б*) от напряжения ускорителя. Знаком \* отмечены результаты, полученные с выключенным криогенным насосом

величину около 60 % от тока протонов, а при 400 кэВ ток вторичных заряженных частиц превышает ток протонов в 1,5 раза.

Сильная зависимость тока протонов от напряжения ускорителя и, соответственно, от энергии указывает на значительные потери ионов при их ускорении (вероятнее всего, в самом начале ускорения), пока эффективность обдирки высока из-за малой скорости. Данный процесс еще усугубляется тем обстоятельством, что вакуумные условия в этом месте хуже из-за потока водорода от источника отрицательных ионов водорода.

Ток вторичных заряженных частиц переносится электронами и положительными ионами.

Перенос тока электронами идентифицирован по измеренному пространственному распределению тормозного излучения и его спектра, генерируемого при поглощении электронов в конструкционных материалах, включая газовую обдирочную мишень.

Пространственное распределение мощности дозы тормозного излучения измерено двумя  $\gamma$ -детекторами LB6500-3H-10 (Berthold Technologies, Германия), один из которых перемещали вокруг установки на расстоянии 2,77 м от центра вакуумного бака ускорителя, в то время как второй дозиметр был установлен неподвижно на расстоянии 3,03 м от центра бака под углом 90°. Результаты измерения представлены на рис. 4.16, на котором нормированная мощность излучения (отношение показаний дозиметров, нормированное на единицу, при угле размещения первого дозиметра 270°) представлена в полярной системе координатах; при этом значения измерены для углов от 240 до 360°



Рис. 4.16. Зависимость нормированной мощности тормозного излучения от угла, в градусах, в полярной системе координат (угол 0° соответствует направлению распространения пучка ионов)

с шагом  $10^{\circ}$ , а значения для углов от 0 до  $120^{\circ}$  отображены симметрично для восприятия.

Такое распределение интерпретируется следующим образом. Основной вклад в тормозное излучение дают электроны, поскольку интенсивность электромагнитного излучения, испускаемого заряженной частицей при ее торможении, пропорциональна квадрату ускорения заряженной частицы. Так как ускорение обратно пропорционально массе частицы, то в одном и том же поле тормозное излучение электрона будет в миллионы раз мошнее излучения протона. По этой же причине. а также из-за того, что излучение с большей энергией меньше ослабляется электродами и стенкой вакуумного бака, основной вклад в интенсивность регистрируемого излучения дают электроны, ускоренные до наибольшей энергии, т.е. до 1 МэВ. Известно [78], что излучение, обусловленное торможением электронов с такой энергией в металлах, имеет ярко выделенную направленность вперед. Регистрируемый провал в направлении 0° обусловлен тем, что излучение, генерируемое электронами, преимущественно облучающими торец газовой обдирочной мишени, выполненной в виде охлаждаемой трубы длиной 40 см с внутренним отверстием диаметром 16 мм, и направленное вперед, сильно ослабляется металлической трубой мишени. Подтверждением ускорения электронов стало измерение спектра тормозного излучения: он простирается до 1 МэВ и имеет максимум в районе 400 кэВ.

Указанием на существование потока вторичных положительных ионов стал факт модификации стенок вакуумной камеры на входе в ускоритель и на выходе из ускорителя в области, близкой к области прохождению пучка отрицательных ионов водорода или протонов. На рис. 4.17 приведены фотографии днищ входной и выходной вакуумных камер ускорителя, сделанные изнутри, со стороны обдирочной мишени. Вокруг входного и выходного каналов диаметром 50 мм отчетливо видны области модифицированной поверхности круглой формы.

Подтверждением существования потока вторичных положительных ионов стало измерение их тока, для чего на днище входной вакуумной камеры был установлен специально сделанный детектор, представляющий собой два концентрических кольцевых диска (внутренний с диаметрами 52 и 90 мм, внешний — 92 и 136 мм) и рамки с натянутой сеткой для подавления вторичной эмиссии. Разделение диска на два проведено по границе модификации поверхности (см. рис. 4.17).

На рис. 4.18 приведены результаты измерения тока на детектор при плавном увеличении напуска газа в обдирочную мишень с момента времени 150 с. Видно, что даже без подачи аргона в обдирочную мишень оба диска детектора регистрируют суммарный ток 36 мкА, что обусловлено ионизацией пучком ионов остаточного газа. С увеличением подаваемого в мишень аргона регистрируемый детектором ток



Рис. 4.17. Фотографии входной (слева) и выходной (справа) вакуумных камер ускорителя (вид со стороны обдирочной мишени). Показаны: 1 — входной канал инжекции пучка диаметром 50 мм, 2 — металлическое зеркало, 3 — подвижная диафрагма



Рис. 4.18. Графики тока на внутренний (1) и внешний диск детектора (2) при увеличении напуска газа в обдирочную мишень. Значения тока на выходе ускорителя (3) следует умножить на 10

растет вплоть до 230 мкА, из них 165 мкА приходится на внутренний диск и 65 мкА — на внешний.

Временное поведение давления остаточного газа, измеряемого в выходной вакуумной камере ускорителя, и мощности дозы тормозного излучения приведено на рис. 4.19. Видно, что с подачей обдирочного газа мощность дозы тормозного излучения увеличилась в 3 раза. Можно сказать, что процессы, обусловленные ионизацией остаточного газа, вносят 1/3 в суммарную дозу тормозного излучения, а 2/3 вносят процессы, обусловленные ионизацией обдирочного газа.



Рис. 4.19. Временна́я зависимость давления остаточного газа на выходе ускорителя (a) и мощности дозы рентгеновского и  $\gamma$ -излучения ( $\delta$ ) при увеличении напуска газа в обдирочную мишень при инжекции пучка ионов с током 1,55 мА



Рис. 4.20. Зависимость мощности поглощенной дозы  $\gamma$ -излучения от тока в ускоряющих зазорах

На рис. 4.20 представлена зависимость мошности дозы тормозного излучения от тока в ускоряющих зазорах при изменении газонапуска. Интерпретируем ее следующим образом. При отсутствии газонапуска в обдирочную мишень ток в ускоряющих зазорах равен около 1800 мкА и мощность излучения — около 2500 мкЗв/ч. При увеличении газонапуска ток в ускоряющих зазорах увеличивается вплоть до 2250 мкА, и пропорционально приросту тока увеличивается мощность излучения вплоть до 7500 мкЗв/ч. Экстраполируя зависимость мощности излучения от тока на нулевое значение, получим пересечение при 1550 мкА. Это означает, что ток инжектируемого пучка отрицательных ионов водорода равен 1550 мкА. Если при отсутствии подачи обдирочного газа ток в ускорителе равен 1800 мкА, то 250 мкА переносится вторичными заряженными частицами, возникшими в результате ионизации ионами остаточного газа. Подача газа в обдирочную мишень ведет к увеличению в 3 раза тока вторичных заряженных частиц (с 250 до 750 мкА), и также в 3 раза увеличивается мощность дозы тормозного излучения. Следовательно, в данном случае треть тока вторичных заряженных частиц обусловлена остаточным газом, в том числе поступающим из источника отрицательных ионов водорода, и две трети тока — обдирочным газом.

Обратим внимание на то, что при полном токе вторичных заряженных частиц в 750 мкА значительная часть, а именно 230 мкА, переносится положительными ионами, которые попадают на кольцевой детектор, установленный на периферии входного вакуумного объема.

Для подавления потоков вторичных заряженных частиц разработана и изготовлена новая входная камера ускорителя, модернизирована выходная камера и приобретен криогенный насос OnBoard 10 (CTI-Cryogenics, США) со скоростью откачки аргона 2500 л/с, водорода — 5000 л/с.

Внутрь новой входной вакуумной камеры установлены разработанные и изготовленные охлаждаемая диафрагма с отверстием диаметром 20 мм, металлический диск для измерения тока и сетка из танталовой проволоки для запирания отрицательным потенциалом вторичных электронов, эмитируемых со стенки вакуумной камеры или металлического диска детектора. На торец трубы канала транспортировки низкой энергии диаметром 50 мм для подавления проникновения электрического поля ускорителя в канал транспортировки установлен изолятор с кольцом под отрицательным потенциалом. На дно выходной вакуумной камеры ускорителя размещен аналогичный кольцевой детектор с сеткой.

Само по себе размещение охлаждаемой диафрагмы привело к уменьшению тока вторичных заряженных частиц в 1,5 раза, что связано с ограничением потока водорода и электронов из тракта

транспортировки пучка в ускоритель. Включение дополнительного криогенного насоса еще в 2 раза уменьшает ток вторичных заряженных частиц. Подача отрицательного потенциала 300 В на металлические сетки, покрывающие часть стенок вакуумного бака, и на металлическое кольцо, установленное на торец трубы тракта транспортировки пучка отрицательных ионов водорода, приводит еще к 3-кратному уменьшению тока вторичных заряженных частиц. Все вместе доводит ток вторичных заряженных частиц до уровня менее 8 % от тока ионов пучка.



Рис. 4.21. Зависимость мощности дозы  $\gamma$ -излучения D(a) и тока на торцевой детектор (б), установленный на входе в ускоритель, от потенциала сетки  $\varphi$ 

На рис. 4.21 представлены графики зависимости мощности дозы тормозного излучения и тока торцевого детектора (диска с сеткой) на входе в ускоритель от потенциала, одновременно поданного на сетку во входном узле ускорителя и на кольцо. Видно, что подача отрицательного потенциала 300 В на сетку и на кольцо в 3 раза уменьшает мощность дозы тормозного излучения, что объясняется уменьшением тока электронов, ускоряемых до полного напряжения. Представленная на рис. 4.21, *б* вольтамперная характеристика торцевого детектора (диска с сеткой) на входе в ускоритель указывает, что коэффициент вторичной эмиссии электронов под действием образующихся положительных ионов имеет величину порядка 10. Такое высокое значение коэффициента вторичной эмиссии электронов характерно для многоэлектронных ионов и атомов с энергией более 100 кэВ [79].

Подавление паразитных потоков заряженных частиц в ускорителе позволило повысить устойчивость работы ускорителя к пробоям по полному напряжению и значительно увеличить ток протонного пучка — с 1,6 до 5 мА.

Шестая модификация стала перманентной — она состоит в оснащении установки средствами диагностик и защиты от повреждений. Это позволило увеличить ток протонного пучка до 10 мА и обеспечить длительную безаварийную стабильную работу установки — с 2019 г. на установке проводят различные экспериментальные исследования практически каждый день. Опишем эту модификацию, принятые решения и полученные результаты.

При работе с пучком протонов с током более 3 мА выявилась проблема фактического отсутствия средств диагностик, позволяющих достоверно контролировать ввод пучка в ускоритель, его ускорение и транспортировку до нейтроногенерирующей мишени. Как правило, попытки обеспечить длительную работу ускорителя при таком токе заканчивались плачевно: либо пучком ионов проплавляли дырки в диафрагмах электродов (см. рис. 4.22), либо прогорали стенки вакуумной камеры в тракте транспортировки пучка протонов. Любое из этих событий требовало длительного ремонта.





Рис. 4.22. Фотографии повреждений диафрагм ускоряющих электродов

Как уже отмечалось, ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией характеризуется сильной входной электростатической линзой, из-за чего требуется точная перефокусировка инжектируемого пучка отрицательных ионов водорода на вход в ускоритель. Сильная входная электростатическая линза ускорителя из перефокусированного пучка ионов должна сделать его близким к параллельному. Далее пучок ионов подвергается действию относительно слабых дефокусирующих линз, образованных в диафрагмах промежуточных электродов из-за их конечной толщины, относительно сильных дефокусирующей линзы и фокусирующей линзы на входе и на выходе из высоковольтного электрода и уже менее сильной линзы на выходе из ускорителя.

При токе пучка ионов миллиамперного диапазона и его размере порядка сантиметра значительное влияние на траекторию ускоряемых

ионов оказывает пространственный заряд, точнее, скомпенсирован он или нет. Поскольку изучаемый в работе ускоритель — первое такое устройство, то достоверные данные о том, каким образом следует учитывать пространственный заряд, отсутствовали. В первоначальной статье с описанием физического проекта ускорителя «методом численного моделирования была показана возможность пропускания пучка отрицательных ионов через перезарядную трубку ускорителя в предположении отсутствия влияния пространственного заряда» [2]. Далее, в препринте [77] «при моделировании транспортировки пучка отрицательных ионов водорода с помощью магнитных линз вводили две зоны полной компенсации пространственного заряда пучка: первую от источника до входа в ускоритель и вторую — внутри перезарядкой трубки». Основанием для такого предположения служили два обстоятельства. Первый состоял в том, что в тракте транспортировки пучка отрицательных ионов водорода предполагалось высокое давление остаточного газа из-за относительно большого напуска водорода в источник (порядка 1 экв. А), относительно большого напуска аргона в газовую обдирочную мишень (порядка 1 экв. А), относительно малого поперечного размера тракта. Все это могло приводить к наработке значительного количества положительных ионов, компенсирующих заряд отрицательных ионов. Второй факт состоял в том, что если предположить полное отсутствие компенсации пространственного заряда, то пучок ионов не удавалось сфокусировать и пропустить через ускоритель. Далее, как уже отмечалось, третья модификация, позволившая обеспечить длительное стабильное получение пучка протонов с током до 1,6 мА достигнута путем отказа выставлять ток в магнитной линзе, фокусирующей пучок отрицательных ионов водорода в ускоритель, равным расчетному в предположении полной компенсации пространственного заряда, и решением принимать во внимание только показания вакуумной лампы, дозиметра  $\gamma$ -излучения и потенциала первого электрода ускорителя. Этот факт увеличения тока пучка протонов за счет отказа от следования расчетам подверг сомнению предположение о том, что в тракте транспортировки пучка отрицательных ионов водорода реализуется полная компенсация действия пространственного заряда.

Для выяснения того, действует ли пространственный заряд на транспортировку отрицательных ионов, реализован следующий модельный эксперимент. Схема тракта транспортировки пучка отрицательных ионов водорода от источника ионов до ускорителя представлена на рис. 4.23. В нем для ухудшения вакуума специально установлен натекатель.

Отрицательные ионы водорода с энергией до 23 кэВ генерирует поверхностно-плазменный источник. Выходящий из источника пучок поворачивается в магнитном поле источника на угол 15°, проходит



Рис. 4.23. Схема тракта транспортировки пучка отрицательных ионов водорода от источника ионов до ускорителя: 1 — источник отрицательных ионов водорода, 2 — конусная диафрагма, 3 — вакуумная лампа, 4 и 13 — турбомолекулярные насосы, 5 — магнитная линза, 6 — подвижная диафрагма, 7 — проволочный сканер OWS-30, 8 — охлаждаемая диафрагма, 9 — первый электрод ускорителя, 10 — вакуумный бак ускорителя, 11 — металлические кольца, 12 — натекатель

через отверстие конусной диафрагмы диаметром 28 мм, фокусируется магнитной линзой и через отверстие охлаждаемой диафрагмы диаметром 20 мм инжектируется в ускоритель. Откачка газа осуществляется двумя турбомолекулярными насосами TMP-3203lm (Shimadzu, Япония) со скоростью откачки по водороду 2400 л/с. Для изменения давления остаточного газа установлен натекатель. Давление остаточного газа измеряется вакуумной лампой Pfeiffer vacuum d-35614.

Измерение тока и профиля пучка отрицательных ионов водорода, инжектируемого в ускоритель, проводят проволочным сканером OWS-30 (D-Pace, Канада), размещенным перед охлаждаемой диафрагмой. Чертеж проволочного сканера представлен на рис. 4.24, фотография — на рис. 3.3, *а.* Сканер имеет две вольфрамовые проволочки диаметром 0,5 мм и длиной 49 мм, закрепленные на общем стержне, который отклонен от оси, пересекающей центр пучка ионов, на угол 13,5°. При измерении стержень поворачивается до угла  $-13,5^{\circ}$  и возвращается обратно. Ось вращения стержня расположена на расстоянии 190 мм от центра пучка ионов. При пересечении центра пучка ионов проволочка наклонена под углом  $45^{\circ}$  к плоскости фланца сканера. При движении стержня измеряют ток, попадающий на проволочку, и угол отклонения стержня. Полученные значения при диаметре пуч-



Рис. 4.24. Чертеж проволочного сканера OWS-30. Дополнительно показан пучок ионов (круг диаметром 30 мм) и система координат (*x*, *y*), используемая далее в тексте при представлении результатов

ка меньше 30 мм позволяют с пространственным разрешением 0,1 мм восстановить поперечный профиль хордовых измерений тока ионов и определить значение полного тока пучка ионов.

Характерные значения тока на проволочку составляют  $10^{-7}$ – $10^{-6}$  А, точность измерения пикоамперметра —  $10^{-9}$  А. Поскольку имеются две проволочки, которые пересекают центр пучка под углами, различающимися на 90° и одновременно не находящимися в пучке, проводимые сканером измерения позволяют в плоскости, ортогональной пучку, получить профили пучка ионов в двух перпендикулярных направлениях.

Измерения, проведенные с установленным проволочным сканером, показали, что в штатном режиме сканер измеряет не только ток отрицательных ионов, а еще и ток вторичных электронов, эмитируемых с поверхности проволочек сканера под действием ионов. В случае если коэффициент вторичной эмиссии электронов превышает единицу, измеряемый ток меняет полярность с отрицательного на положительный.

Для корректного измерения тока ионов сканер модернизировали: перед сканером и после него на расстоянии 50 мм установили по одному металлическому кольцу с внутренним диаметром 60 мм, которые находились под отрицательным потенциалом 300 В для подавления вторичной эмиссии электронов с проволочек сканера. Такая конструкция создает потенциальный барьер высотой более 160 В для электронов, эмитируемых с проволочек сканера. Из измеренной зависимости тока пучка заряженных частиц, измеренного проволочным сканером, от потенциала колец определен коэффициент вторичной эмиссии электронов; в данном случае он имеет величину 2,61 ± 0,08.



Рис. 4.25. Зависимость тока I(a), площади сечения S(b) и плотности тока j(b) пучка отрицательных ионов водорода от давления остаточного газа P

На рис. 4.25 приведена зависимость тока, площади сечения и плотности тока пучка отрицательных ионов водорода от давления остаточного газа, регулируемого натекателем. Ток измерен проволочным сканером. Площадь сечения равна площади эллипса, каждая из осей которого равна поперечному размеру пучка, внутри которого заключено 95% от полного тока, измеренного сканером. Плотность тока вычислена делением тока на площадь сечения. Погрешность измерения тока определялась погрешностью пикоамперметра и не превышала 1%. Погрешность давления, определяемая как среднеквадратичное отклонение по выборке из 600 значений, измеренных вакуумной лампой за 10 мин, составила от 2 до 5%.

Согласно рис. 4.25 с ухудшением вакуумных условий уменьшается не только ток ионов, что связано с их обдиркой на остаточном газе, но и размер пучка, что объясняется ослаблением действия пространственного заряда из-за наличия неполной компенсации заряда ионов.

График, представленный на рис. 4.25, *б*, дает ответ на поставленный вопрос, действует ли пространственный заряд. Видно, что при обычных условиях (2,5 мПа), когда вакуумные условия специально не ухудшаются, пространственный заряд действует, заметно увеличивая площадь сечения пучка. Заметим, что данный эксперимент проведен без напуска аргона в газовую обдирочную мишень ускорителя. Однако напуск обдирочного газа не приводит к кардинальному ухудшению вакуумных условий в тракте транспортировки пучка отрицательных ионов, и действие пространственного заряда должно сохраняться. Также заметим, что при наилучших вакуумных условиях пространственный заряд действует не в полной мере — это означает, что он частично компенсирован. Если бы пространственный заряд был полностью нескомпенсированным, размер пучка ионов был бы много больше [77].

Обсуждая полученные в данном эксперименте результаты, обратим внимание на то, что максимальная плотность тока ионов реализуется не при наилучших вакуумных условиях, а при промежуточном значении давления остаточного газа  $7,4\pm0,2$  мПа. При достижении наилучшего вакуума,  $2,5\pm0,1$  мПа, ток пучка ионов возрастает на 5%, его размер — на 36%, при этом плотность тока уменьшается на 25%.

Таким образом, ясно, что не нужно стремиться улучшать вакуумные условия в тракте транспортировки пучка. Оптимальный ввод пучка реализуется при некотором давлении остаточного газа — в данном случае 7,4 мПа, достаточно малом для незначительной обдирки пучка ионов и достаточно большом для компенсации пространственного заряда. Также понятно, что при увеличении тока инжектируемого пучка усиливается расталкивание ионов в пучке, и для фокусировки пучка в отверстие входной диафрагмы ускорителя необходимо увеличивать ток фокусирующей магнитной линзы. Введение в ускоритель пучка отрицательных ионов водорода с максимальной плотностью тока важно для стабильной работы ускорителя. Это обусловлено тем, что малое отверстие охлаждаемой диафрагмы снижает нежелательное проникновение в ускоритель водорода и цезия, напускаемых в источник ионов, а также быстрых атомов водорода, которые образуются в результате обдирки ионов водорода на остаточном газе и способствуют нагреву диафрагм ускорительных электродов.

На рис. 4.26, *а* представлены хордовые измерения проволочного сканера при давлениях остаточного газа 2,5, 10 и 20 мПа. Сделав усреднение относительно центра пучка и выполнив абелево преобразование, получим радиальное распределение тока пучка ионов, представленное на рис. 4.26, б. Видно, что пучок ионов водорода имеет форму кольца, при уменьшении давления остаточного газа его размер увеличивается и он становится более полым.



Рис. 4.26. Профили хордовых измерений тока ионов *I* (*a*) и восстановленные радиальные распределения тока ионов *j* (*б*) при разных значениях давления остаточного газа

Для понимания причины того, что инжектируемый в ускоритель пучок скорее кольцевой, чем гауссов, измерен фазовый портрет пучка с применением сканера и подвижной диафрагмы.

Для измерения фазового портрета пучка использован предложенный нами новый методический прием с подвижной диафрагмой и проволочным сканером. Перед проволочным сканером в пучок вводят диафрагму и при ее перемещении с высокой степенью детализации измеряют профиль проходящего через отверстие диафрагмы пучка ионов. Использованная диафрагма изготовлена из танталовой пластины толщиной 1 мм с отверстием диаметром 0,8 мм. Диафрагма установлена перед сканером на расстоянии 225 мм. Ее перемещение под углом 45° к оси сканера (вдоль оси y, см. рис. 4.24) позволяет восстановить фазовый портрет пучка в пространстве координат и углов распространения (y, y') путем проведения сканером хордовых измерений вдоль оси y и определить эмиттанс пучка. Для уменьшения размера пучка в области диафрагмы ток магнитных линз увеличен с 54 до 65 А. Шаг перемещения диафрагмы составляет 0,5 мм. Результаты измерений представлены на рис. 4.27.

Для вычисления эмиттанса пучка проведена аппроксимация данных гладкой кривой для каждого положения диафрагмы, определены координаты проволочки, при которых измеряемый ток равен заданному



Рис. 4.27. Фазовый портрет пучка ионов в пространстве координат (y, y'): *a*) распределения тока *I*, измеряемого сканером, для каждого положения отверстия диафрагмы, перемещаемой с шагом 0,5 мм (по оси абсцисс — значения положения отверстия диафрагмы, по оси ординат — значения положения проволочки сканера);  $\delta$  — трехмерное изображение фазового портрета пучка ионов

значению, а также определена величина тока в области, ограниченной этими координатами, и вне этой области. В результате суммирования полученных значений для всех положений диафрагм имеем три величины: площадь фигуры, описанной изолинией заданного значения тока, ток пучка ионов внутри этой фигуры и ток за пределами фигуры. При аппроксимации за нулевой уровень тока брали либо среднее значение тока на периферии плюс среднеквадратичное отклонение по выборке этих значений, либо среднее значение тока минус среднеквадратичное отклонение. Этим определялась ошибка измерения эмиттанса. Нормализованный геометрический эмиттанс пучка составил  $0,27 \pm 0,02$  мм·мрад.

Такая величина эмиттанса меньше аксептанса обдирочной трубки ускорителя, но отчетливо видимое на рис. 4.27 отличие фазового портрета пучка от эллипса может приводить к потерям пучка в ускорителе и нежелательному нагреву диафрагм ускоряющих электродов. Форма фазового портрета пучка указывает на заметное влияние сферической аберрации магнитных линз на фокусировку ионов водорода. Очевидно, что для улучшения качества пучка ионов, инжектируемого в ускоритель, следует уменьшить его размер в области фокусирующей магнитной линзы либо увеличить апертуру линзы.

Таким образом, выяснено, что на транспортировку пучка отрицательных ионов водорода влияет пространственный заряд, а магнитная фокусирующая линза характеризуется заметной сферической аберрацией. Для улучшения качества инжектируемого в ускоритель пучка ионов магнитная линза модернизирована: катушка, ближняя к источнику ионов, усилена и приближена к источнику, вторая катушка размещена вплотную к первой.

После проведенной модернизации измерен фазовый портрет пучка ионов, но уже специально приобретенным измерителем эмиттанса ES-4 (D-Pace, Канада), адекватно подходящим для этой задачи. Сканер установлен на расстоянии 57 мм перед входной диафрагмой ускорителя, входная щель сканера равна 0,1 мм, измерения проведены с шагом 0,1 мм и 1 мрад. Результаты измерений представлены на рис. 4.28 и в табл. 4.2.



Рис. 4.28. Профиль (сверху) и фазовый портрет (снизу) пучка отрицательных ионов водорода, инжектируемых в ускоритель, при разных значениях тока (значения тока приведены в левом нижнем углу на фазовом портрете пучка)

Видно, что с увеличением тока увеличивается нормализованный геометрический эмиттанс пучка ионов и его размер. Первое обусловлено изменением разряда в источнике ионов, второе — действием пространственного заряда при транспортировке ионов от источника ионов до ускорителя.

Сравнивая полученные результаты, заключаем следующее: модернизация магнитной линзы сделала фазовый портрет пучка больше
Ток, мА	y, mm	$y^\prime$ , мрад	$arepsilon_{ m norm}$ , мм $\cdot$ мрад	
0,44	3,92	31,8	0,13	
0,7	4,31	31	0,14	
0,85	4,36	30,5	0,14	
1	4,45	30,1	0,15	
1,5	4,40	26,9	0,17	
2	4,54	25,7	0,18	
3	4,59	29,5	0,20	

Таблица 4.2. Характеристики эллипса и нормализованного геометрического эмиттанса фазового портрета пучка отрицательных ионов водорода

похожим на эллипс. Заметим, что нормализованный эмиттанс пучка ионов  $\varepsilon$  уменьшился на 25% — с 0,27 до 0,20 мм·мрад, но это не связано напрямую с улучшением линзы, а может быть связано с нахождением со временем более оптимального режима генерации ионов.

Поскольку входная электростатическая линза ускорителя сильная, для оптимального ускорения ионов требуется обеспечить контроль положения пучка ионов на входе в ускоритель, для чего разработаны и внедрены три диагностические методики.

Оказалось, что для контроля положения пучка ионов в ускорителе эффективно использовать видеокамеры Hikvision. Входной и выходной узлы ускорителя модернизированы таким образом, что стало возможно разместить по паре видеокамер, направленных на входную и выходную диафрагму внешнего ускоряющего электрода. Видеокамеры настроены таким образом, что позволяют одновременно видеть и пучок ионов из-за ионизации ионами остаточного и обдирочного газа, и нагрев диафрагм (рис. 4.29).

Внедренная оптическая диагностика стала рутинным инструментом, обеспечивающим визуальный контроль за нагревом диафрагм



Рис. 4.29. Прохождение пучка отрицательных ионов водорода без нагрева входной диафрагмы (слева) и нагрев входной диафрагмы при повышении тока пучка (справа). 1 — диафрагма, 2 — пучок ионов

и инструментальный контроль за положением и размером пучка ионов. Интерфейс разработанного программного обеспечения, обрабатывающего в режиме реального времени поток изображений с пары видеокамер и выводящего на монитор оператора текущее положение и размер пучка ионов в области диафрагмы первого ускоряющего электрода, представлен на рис. 4.30.



Рис. 4.30. Интерфейс программного обеспечения, обрабатывающего в режиме реального времени поток изображений с пары видеокамер и выводящего текущее положение и размер пучка ионов

Вторая методика заключается в использовании проволочного сканера OWS-30. Измеренные сканером в двух направлениях профили пучка ионов позволяют восстановить координату центра пучка ионов и его размер. На рис. 4.31 приведен пример изображения пучка ионов относительно входного отверстия ускорителя, выводимого на монитор пультовой установки.

Третья применяемая методика контроля положения пучка также оптическая — входной узел ускорителя модифицирован таким образом, что видеокамера направлена на входную охлаждаемую диафрагму ускорителя, и она регистрирует излучение в оптическом диапазоне, обусловленное ионизацией остаточного газа, и излучение от проволочек сканера, когда они пересекают пучок при измерении.

Для транспортировки пучка протонов от ускорителя до нейтроногенерирующей мишени используют тракт транспортировки пучка, который в первоначальном варианте включал в себя две пары квадрупольных линз для компенсации действия пространственного заряда



Рис. 4.31. Двумерный профиль пучка, построенный по данным проволочного сканера OWS-30. Шкалой обозначены регистрируемые токи

пучка протонов, поворотный магнит для поворота его вниз и развертку для сканирования его по поверхности литиевой мишени.

Зачастую проводка пучка протонов до мишени сопровождалась прожиганием элементов вакуумной камеры. На рис. 4.32 (слева) показано повреждение элемента вакуумной камеры, установленного сразу за поворотным магнитом. Для предотвращения повреждения вакуумной камеры в этом месте внутрь вставляли массивное медное изделие, показанное на рис. 4.32 (справа), которое периодически поворачивали по азимуту, подставляя под отклоняющийся пучок неповрежденную часть. Поэтому первоочередной задачей стало обеспечить транспортировку





Рис. 4.32. Поврежденная вакуумная камера, установленная после поворотного магнита (слева), и массивная медная вставка для предотвращения повреждения (справа)

пучка протонов до литиевой мишени без повреждения элементов тракта, для чего следовало изготовить и разместить элементы, предотвращающие повреждение вакуумной камеры.

Другая не менее важная задача — оснащение установки средствами диагностики положения и размера пучка протонов по всему тракту транспортировки. Решение этой задачи осложнялось тем обстоятельством, что мощность стационарного пучка протонов достаточно высока. Так, разработанный проволочный сканер уже в первом испытании был поврежден. Фактически единственной примененной методикой, которая позволила выставить тракт транспортировки пучка протонов, стало прожигание пучком протонов металлических «фольг» толщиной вплоть по 10 мм, как показано на рис. 4.33.



Рис. 4.33. Мишень из нержавеющей стали толщиной 1 см, используемая для диагностики положения пучка протонов

Выполнение этих двух задач требовало пространства для размещения элементов защиты и диагностических средств, которого не было. Необходимо было отказаться от использования ранее установленных элементов либо находить другое решение. Потенциальным элементом, от которого можно было попробовать отказаться, были квадрупольные линзы, установленные, как уже отмечалось, для компенсации действия пространственного заряда пучка протонов. Поскольку данный ускоритель был первым экземпляром подобного рода ускорителей, то, как и в случае с предположением о том, что в тракте транспортировки пучка отрицательных ионов водорода пространственный заряд полностью скомпенсирован, предположение о том, что пространственный заряд влияет на транспортировку пучка протонов, следовало экспериментально подтвердить или опровергнуть.

Забегая вперед, сразу скажем, что все три задачи: оснащение тракта элементами защиты, диагностическими средствами и выяснение того,

влияет ли пространственный заряд на транспортировку пучка протонов или нет, — решены. Такая ремарка необходима для того, чтобы при восприятии материала в той последовательности, в которой он представлен, учитывали решение всех этих трех взаимосвязанных задач.

Вместо двух пар квадрупольных линз на установке по всему высокоэнергетическому тракту были установлены медные охлаждаемые диафрагмы для предохранения элементов установки от нагревания протонным пучком и прожигания (рис. 3.2, в). Это изменение в ускорителе сделано до получения результатов действия пространственного заряда пучка протонов на его транспортировку в высокоэнергетическом тракте установки. Диаметр охлаждаемой диафрагмы равен 165 мм, ее толщина — 41 мм. Проходное отверстие охлаждаемой диафрагмы выглядит как усеченный конус с диаметром оснований 40, 66 или 90 мм. Охлаждающая вода подводится и отводится трубками диаметром 13 мм. Сечение контура охлаждения в диафрагме представляет собой параллелограмм со сторонами 6 и 25 мм.

Охлаждаемые диафрагмы помещены в наиболее важные места высокоэнергетического тракта — на выходе из ускорителя перед бесконтактным датчиком тока, перед поворотным магнитом, после поворотного магнита и после системы развертки пучка. Их основное предназначение — поглощение гало пучка и (в случае необходимости) кратковременное поглощение всего пучка при резком изменении параметров разряда в источнике отрицательных ионов водорода или пульсациях в напряжении, приходящих с подстанции, на источник высоковольтного питания ускорителя.

Дополнительным предназначением охлаждаемых диафрагм стало их использование в качестве термического аналога пикап-электрода. Внутрь каждой из диафрагм аксиально симметрично вставлены по 4 термопары, с помощью которых определяют смещение протонного пучка относительно оси транспортировки пучка за счет разницы температур, а средняя температура термосопротивлений характеризует угловую расходимость протонного пучка. Пример нагрева охлаждаемых диафрагм при проведении пучка по высокоэнергетическому тракту транспортировки приведен на рис. 4.34.

Данная диагностика смещения пучка в совокупности с визуальным наблюдением пучка видеокамерами и диагностикой мощности, снимаемой с газовой обдирочной мишени, рутинно используется оператором для проведения пучка ионов через всю установку.

Для контроля положения и размера пучка протонов реализовано несколько диагностических методик, от экзотических до ставших рутинными. Это: i) охлаждаемые диафрагмы, размещенные вдоль высокоэнергетического тракта, ii) люминесценция поверхности литиевой мишени при облучении пучком протонов, iii) визуальный контроль



Рис. 4.34. Интерфейс обработки значений термопар, вставленных в охлаждаемые диафрагмы. Векторами указано смещение пучка относительно центра тракта транспортировки. Каждый вектор показывает смещение пучка относительно оси канала транспортировки в соответствующей диафрагме

за отпечатком пучка протонов на поверхности литиевой мишени, iv) использование термосопротивлений, вставленных в медную подложку нейтроногенерирующей мишени, v) распространение границы блистерообразования при имплантации протонов в металл, vi) распространение границы плавления лития на нейтроногенерирующей мишени, vii) сканирование литиевой мишени с содержанием радиоактивного изотопа <sup>7</sup>Be, viii) сканирование пучка протонов щелью или отверстием, ix) использование тепловизора.

Для измерения фазового портрета пучка протонов использован предложенный нами новый методический прием с подвижной диафрагмой и проволочным сканером, ранее реализованный при измерении фазового пучка отрицательных ионов водорода. В этом методе часть пучка ионов вырезают диафрагмой и измеряют его профиль проволочным сканером на некотором расстоянии. Набор данных, полученных при сканировании пучка ионов диафрагмой, позволяет восстановить фазовый портрет пучка ионов и определить его эмиттанс.

Охлаждаемая диафрагма с внутренним отверстием 1 мм установлена на расстоянии 1,86 м от центра ускорителя. Диафрагма закреплена на 3D подвижном вводе движения TTX100-100-200-YZS (UHV Design), и ее можно контролируемо перемещать в плоскости, ортогональной направлению распространения пучка протонов. Поперечный профиль струи протонов измеряют проволочным сканером, установленным после поворотного магнита на расстоянии 3,11 м от диафрагмы. Размещение оси сканера под углом 45° к осям x и y позволяет восстановить фазовый портрет пучка в пространстве координат и углов распространения (x, x') и (y, y').

В документации к проволочному сканеру указано, что максимальная энергия измеряемого пучка должна быть не более 1 МэВ, а плотность мощности пучка — не более 1 Вт/мм<sup>2</sup>. Нами сканер использован в режиме, не предусмотренном изготовителем, а именно при бо́льшей энергии и при бо́льшей плотности мощности. Установлено, что сканер обеспечивает достоверные измерения с требуемым пространственным разрешением при энергии протонов 2 МэВ и токе до 3 мА. При токе 3 мА проволочка сканера, пересекающая струю протонов, нагревается до такой степени, что инициирует пробой в вакуумном промежутке между разогретой проволочкой и металлическими кольцами под отрицательным потенциалом 300 В. Также к ограничению тока пучка протонов в 3 мА приводит сильный нагрев подвижной охлаждаемой диафрагмы, приводящий к снижению электрической прочности ускорителя из-за усиленной эмиссии электронов с ее поверхности.

Фазовый портрет пучка протонов измерен с применением охлаждаемой диафрагмы, сканирующей пучок с шагом 1 мм, и проволочного сканера, измеряющего профиль прошедшей через диафрагму струи протонов.

Измерения фазового портрета пучка протонов в пространстве координат и углов распространения (x, x') и (y, y') проведены при токе 0,5, 1, 2 и 3 мА, энергии  $2000 \pm 2$  кэВ. На рис. 4.35 представлены



Рис. 4.35. Фазовый портрет пучка протонов (y, y') при токе 0,5, 1, 2 и 3 мА

	Ток, мА	y, мм	$y^\prime$ , мрад	$\varepsilon_{ m norm}$ , мм·мрад	
	0,5	4,2	0,38	0,21	
ĺ	1	5,6	0,56	0,27	
ſ	2	6,1	1,2	0,24	
ĺ	3	5,2	1,6	0,21	

Таблица 4.3. Характеристики эллипса и эмиттанса фазового портрета пучка протонов

результаты измерения фазового портрета пучка протонов в пространстве (y, y'), похожие результаты получены и в пространстве (x, x'). В табл. 4.3 представлены характеристики фазового эллипса и значение нормализованного геометрического эмиттанса фазового портрета пучка протонов.

Обсудим фазовый портрет пучка протонов. На рис. 4.35 видно, как с увеличением тока изменяется портрет. Если при токе 0,5 мА пучок практически параллельный и имеет поперечный размер y = 4,2 мм, то с увеличением тока увеличивается размер пучка и он становится расходящимся. При токе 3 мА пучок характеризуется расходимостью y' = 1,6 мрад и имеет поперечный размер y = 5,2 мм. Такое поведение объясняется действием пространственного заряда в тракте транспортировки пучка отрицательных ионов водорода: при увеличении тока увеличивается действие пространственного заряда, ионы приобретают дополнительный поперечный импульс, и пучок становится шире.

Обратим внимание на то, что при промежуточных значениях тока, 1 и 2 мА, пучок протонов становится шире и его эмиттанс больше. Это связано с тем, что пучок отрицательных ионов водорода в данном случае вводят в ускоритель не по оси, а чуть выше или ниже, и сильная входная электростатическая линза ускорителя расщепляет пучок ионов. На рис. 4.35 этот эффект особенно заметен при токе 1 мА: эллипс как бы перетягивается посередине. Именно по этой причине особое внимание при инжекции пучка отрицательных ионов водорода в ускоритель уделяют контролю положения пучка ионов, используя в штатном режиме проволочный сканер. В данном случае проволочный сканер использован для измерения фазового портрета пучка протонов, и положение пучка отрицательных ионов водорода им не контролировали.

Также обратим внимание на то, что при токе 3 мА нормализованный эмиттанс инжектируемого пучка отрицательных ионов водорода практически равен эмиттансу пучка протонов. Такое поведение при токе 3 мА объясняется тем, что режим работы при таком токе часто используют, и он оптимизирован. Теперь изучим влияние силы магнитной линзы на пучок протонов. Измерим фазовый портрет пучка протонов при стандартно используемой силе магнитной линзы (назовем этот режим оптимальным), а также при уменьшении или увеличении тока в катушках линзы на 1,6 % (назовем эти режимы слабым и сильным). На рис. 4.36 представлены результаты измерения фазового портрета пучка протонов с током 2 мА, а в табл. 4.4 — его характеристики.

Таблица 4.4. Характеристики эллипса и нормализованного геометрического эмиттанса фазового портрета пучка протонов при изменении режима фокусировки

Режим фокусировки	y, mm	$y^\prime$ , мрад	$\varepsilon_{ m norm}$ , мм · мрад
Слабый	6,0	1,7	0,20
Оптимальный	5,4	1,2	0,22
Сильный	4,6	0,9	0,21

Как видно, при переходе от слабого режима фокусировки к сильному уменьшается и размер пучка, и его угловое расхождение. Кажется,



Рис. 4.36. Фазовый портрет пучка протонов с током 2 мА при изменении режима фокусировки

что сильный режим фокусировки лучше, чем оптимальный. Однако, как видно на рис. 4.37, при сильном режиме фокусировки входная диафрагма внешнего ускоряющего электрода нагревается до уровня, непригодного для постоянной работы.



Рис. 4.37. Изображение входной диафрагмы внешнего ускоряющего электрода в оптимальном (*a*) и сильном (*б*) режимах фокусировки. Стрелкой показан ускоряемый пучок отрицательных ионов водорода

Поэтому визуальный контроль за положением пучка, за нагревом входной диафрагмы ускорителя в комбинации с использованием охлаждаемых диафрагм с термосопротивлениями в высокоэнергетическом тракте является наиболее адекватным из реализованных нами методов (сценариев) для стабильного и долговременного получения пучка протонов в широком диапазоне параметров. По этому сценарию выставляют определенные значения силы магнитной фокусирующей линзы и корректоров в зависимости от энергии и тока планируемого к получению пучка ионов и затем вносят коррективы на основании визуального наблюдения нагрева входной диафрагмы ускорителя и анализа показаний охлаждаемых диафрагм с термосопротивлениями в высокоэнергетическом тракте.

В результате проведенного исследования установлено, что на выходе из ускорителя пучок протонов при оптимальной фокусировке имеет диаметр  $10 \pm 1$  мм, расходимость  $\pm 1,5$  мрад, нормализованный геометрический эмиттанс  $\varepsilon_{norm} = 0,2$  мм мрад. Такой пучок может быть доставлен на расстояние 10 м до литиевой мишени диаметром 100 мм без применения дополнительных фокусирующих элементов.

Влияние пространственного заряда на транспортировку пучка протонов энергией 2 МэВ в высокоэнергетическом тракте исследовано с помощью термосопротивлений, вставленных внутрь медной подложки литиевой мишени, и тепловизора FLIR.

Медная подложка литиевой мишени выполнена в виде диска диаметром 143 мм и толщиной 8 мм. Со стороны протонного пучка подложка плоская, с другой стороны в ней сделаны четыре двухзаходных канала спиралевидной формы глубиной 3 мм для протекания охлаждающей воды, температура которой на входе равнялась от 22,5 до 22,8 °С. С боковой поверхности медного диска на расстоянии 2,5 мм от плоской поверхности просверлены 8 отверстий, в которые вставлены термопары. Четыре термопары размещены равномерно по азимуту на расстоянии 18 мм от центра диска. Другие четыре термопары также равномерно размещены по азимуту со сдвигом относительно первых на 45°; одна из них помещена в центр диска, другие три — на расстоянии 26 мм от центра диска. После размещения термопар отверстия заделаны высокотемпературным цементом.

Для контроля положения и размера пучка протонов на мишени используют тепловизор FLIR, установленный на патрубок с окном из фторида бария под углом 45° к поверхности мишени. Для контроля температуры поверхности мишени используют пирометр Optris, установленный на второй патрубок. Ток протонного пучка измеряют бесконтактным датчиком тока и омическим делителем, подключенным к мишени, электрически изолированной от установки. Манометры глицериновые (WIKA, Германия), датчики давления PT2415 (IFM, Германия), расходомеры SV7614 (IFM, Германия) и датчики температуры воды размещены на панели, подключенной к мишени дюймовыми шлангами длиной 5,7 м.

Из ускорителя получают пучок протонов энергией 2 МэВ, током от 0,48 до 3,2 мА, поперечным размером 1 см и направляют его на мишень. Размер пучка протонов на мишени определяется выходной электростатической линзой ускорителя, поворотным магнитом и действием пространственного заряда. Огибающая осесимметричного нескомпенсированного пучка R(z) под действием собственного поля описывается уравнением  $\frac{d^2 R(z)}{dz^2} = \frac{K}{R(z)}$ , где z — продольная координата,  $K = \frac{I_0 e}{2\pi m \varepsilon_0 (\beta \gamma c)^3}$  — обобщенный первеанс пучка. Это нелинейное дифференциальное уравнение второго порядка имеет решение [80]  $Z = \frac{R_0}{\sqrt{2K}} F(\rho)$ , где  $R_0$  — начальный радиус пучка,  $\rho = \frac{R(z)}{R_0}$ ,  $F(\rho) = \int_{1}^{\rho} \frac{dy}{\sqrt{lny}}$ . Согласно решению этого уравнения радиус пучка на мишени увеличивается в 1,2 раза при токе 0,5 мА и в 1,6 раза при токе 3 мА. Дополнительное увеличение размера пучка на мишени может быть обусловлено действием пространственного заряда в области фокуса поворотного магнита. Если же электрический заряд протонов в тракте транспортировки пучка скомпенсирован электрическим зарядом электронов, возникающих при взаимодействии протонов с остаточным газом, то действия пространственного заряда нет. В этом случае размер пучка протонов на мишени определяется только выходной электростатической линзой ускорителя и поворотным магнитом и не зависит от тока пучка протонов. При проведении данного исследования использовали мишень без лития и не включали сканер для развертки пучка протонов по поверхности мишени. Мишень охлаждают водой, протекающей по каналам охлаждения; измеренный расход воды составил 15,1 л/мин.

На литиевой мишени, размещенной в вертикальной части тракта транспортировки пучка, профиль пучка протонов предложено определить по нагреву поверхности мишени. Установлено, что пирометр занижает температуру из-за большой области измерения — 19 мм и отсутствия технической возможности установить коэффициент эмиссии меньше 0,1, характерного для поверхности полированной меди. Тепловизор, наоборот, завышает показания температуры из-за нетеплового свечения, обусловленного люминесценцией меди под действием высокоэнергетичных протонов. Также программное обеспечение камеры не позволяет оцифровывать результаты измерений температуры без вмешательства встроенного алгоритма автокалибровки. Достоверное измерение температуры осуществлено термопарами.



Рис. 4.38. Тепловое поле нагрева мишени протонным пучком, полученное с использованием тепловизора. Белым пунктиром обозначен круг диаметром 30 мм

На рис. 4.38 представлено характерное изображение, получаемое с помощью тепловизора, растянутое по вертикали в  $\sqrt{2}$  раз. На изображение пунктиром наложен круг диаметром 30 мм — он наложен на границу яркости свечения 1/e по отношению к максимуму. Видно, что

пучок протонов нагревает область внутри диаметра 30 мм. Заметим, что светлые точки на изображении обусловлены нагревом мелких металлических капель, упавших на мишень сверху из-за касания пучка протонов стенок вакуумной камеры при подъеме напряжения ускорителя. Светлый овал вокруг пучка протонов, показанный пунктиром, не связан с нагревом — это отражение инфракрасного излучения мишени стенками цилиндрического патрубка, на который установлена камера. Далее во время проведения исследований изображения тепловизор использовали для корректировки положения пучка протонов на мишени.

Термопарами, вставленными внутрь медного диска литиевой мишени, измерена температура при облучении мишени пучком протонов

с током, который изменяли от 0,48 до 3,2 мА. Результаты измерения температуры, усредненной по значениям соответствующих термопар, представлены на рис. 4.39. Температура поверхности мишени (медного диска) может быть определена как

$$T = \Delta T_{\rm Cu} + \Delta T_{\rm w-liq} + \Delta T_{\rm liq} + T_{\rm liq},$$

где  $\Delta T_{\rm Cu}$  — перепад температуры на меди,  $\Delta T_{\rm w-liq}$  — разность температуры охлаждаемой стенки и жидкости,  $\Delta T_{\rm liq}$  — величина среднего нагрева теплоносителя,  $T_{\rm liq}$  — начальная температура теплоносителя.



Рис. 4.39. Зависимость температуры мишени от тока протонного пучка: 1 — в центре, 2 — на расстоянии 18 мм от центра, 3 — на расстоянии 26 мм от центра

Длина пробега протона с энергией 2 МэВ в меди, равная 19 мкм [81], много меньше толщины медного диска, и можно полагать, что протонный пучок нагревает только поверхность. В этом случае перепад температуры от поверхности диска до охлаждающего канала оценим как  $\Delta T_{\mathrm{Cu}} = q h_{\mathrm{Cu}} / \lambda_{\mathrm{Cu}}$ , где q — плотность мощности нагрева,  $h_{\rm Cu} = 5$  мм и  $\lambda_{\rm Cu} = 400$  Вт · м<sup>-1</sup> · К<sup>-1</sup> – толщина и коэффициент теплопроводности меди. Перенос тепла от твердой стенки к теплоносителю осуществляется конвективным теплообменом, эффективным при турбулентном течении жидкости. Из рис. 4.39 видно, что температура растет линейно с ростом нагрева, что указывает на охлаждение стенки турбулентным потоком воды без закипания. Если бы реализовался еще более эффективный режим теплосъема турбулентным потоком воды с пузырьковым кипением, то температура оставалась бы постоянной при увеличении нагрева [82]. В режиме теплосъема турбулентным потоком воды без закипания перепад температуры между охлаждаемой стенкой и теплоносителем  $\Delta T_{w-liq}$  определяется как  $\Delta T_{w-liq} = P/(\alpha S)$ , где P — передаваемая мощность тепла, S — площадь поверхности теплообмена,  $\alpha$  — коэффициент теплоотдачи, который определяется гидродинамическим режимом течения жидкости и ее термодинамическими свойствами [83].

Так как тепло снимается водой, суммарно на выходе из мишени она нагревается на  $\Delta T_{\text{lig}} = P/(C_p \cdot Q)$ , где P — мощность нагрева,  $C_p$  и Q – теплоемкость и расход воды. Все три составляющие перепада температуры,  $\Delta T_{
m Cu}$ ,  $\Delta T_{
m w-liq}$  и  $\Delta T_{
m liq}$ , имеют линейную зависимость от мощности нагрева. Следовательно, нагрев мишени пропорционален мощности пучка протонов, а потому по измеренному распределению температуры можно восстановить профиль плотности мощности пучка протонов. Представим радиальное распределение мощности и, как следствие, температуры распределением Гаусca:  $T = \Delta T_0 \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2}\right) + T_{\mathrm{liq}}$ , где  $\Delta T_0 = \Delta T_{\mathrm{Cu}} + \Delta T_{\mathrm{w-liq}} + \Delta T_{\mathrm{liq}}$  прирост температуры в максимуме плотности мощности нагрева, т.е. центре пучка протонов,  $r_0$  — радиус пучка протонов. Тогда, измерив температуру в центре  $T_0$  и на известном радиусе  $T_r$  ( $r_t = 18$  или 26 мм), определим радиус пучка протонов как  $r_0 = r_t / (\ln A)^{1/2}$ , где  $A = (T_0 - T_{lig})/(T_r - T_{lig})$ . Результат восстановления радиуса пучка протонов в зависимости от тока представлен на рис. 4.40. Видно, что определенный таким образом радиус пучка протонов немного различен в зависимости от расположения термопар. Это различие может быть объяснено тем, что форма пучка протонов немного отличается от гауссовой.

Основной результат исследований состоит в том, что размер пучка протонов на мишени не зависит от тока пучка в диапазоне от 0,48



Рис. 4.40. Зависимость радиуса пучка протонов от тока пучка: штриховая линия — по данным термопар, расположенных на радиусе 26 мм, сплошная линия — 18 мм

до 3,2 мА; диаметр пучка протонов равен  $33 \pm 5$  мм. Отсутствие зависимости размера пучка на мишени от его тока указывает на отсутствие заметного влияния пространственного заряда на транспортировку пучка протонов от ускорителя до мишени. Данное обстоятельство упрощает комплектацию тракта транспортировки пучка, поскольку не требует установки квадрупольных линз, и существенно упрощает получение пучка протонов в широком диапазоне изменения тока, что важно при проведении исследований на установке.

#### 4.9. Заключение

В результате проведения множества научных исследований и многочисленных модификаций новый предложенный нами тип ускорителя заряженных частиц, ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, выведен на устойчивый долговременный режим работы со следующими параметрами. В ускорителе получают мощный (до 20 кВт) стационарный монохроматический пучок протонов или дейтронов с энергией, изменяемой в диапазоне от 0,3 до 2,3 МэВ, с током, изменяемым от 0,5 до 10 мА. Пучок ионов отличает высокая монохроматичность и стабильность энергии (0,1%) и высокая стабильность тока (до 0,4%). На выходе из ускорителя пучок ионов имеет диаметр  $10 \pm 1$  мм, расходимость  $\pm 1,5$  мрад, нормализованный геометрический эмиттанс  $\varepsilon_{\rm norm} = 0,2$  мм · мрад.

Детальное описание проведенных исследований и полученные результаты изложены в диссертационных работах [58, 84, 85] и в научных статьях [50, 57, 59, 63–67, 74–77, 86–100]. Для защиты прав на интеллектуальную собственность получены патенты [71–73, 101–103].

## Глава 5

# ЛИТИЕВАЯ НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩАЯ МИШЕНЬ

## М.И. Бикчурина, Д.А. Касатов, Е.О. Соколова, С.Ю. Таскаев

В качестве литиевой нейтроногенерирующей мишени рассмотрены разные типы мишеней — струйная, ленточная, сферическая, объемная, вращающаяся, стационарная. Из требований высокой плотности потока нейтронов и их спектра вытекает необходимость близкого расположения пациента к месту рождения нейтронов и использования минимального количества конструкционных материалов в мишенном узле. При окончательном выборе варианта мишени учитывалась не столько сложность ее практической реализации, сколько возможность посредством ее применения формировать терапевтический нейтронный пучок наилучшего качества. В итоге выбрана мишень стационарная, хоть и сложная в изготовлении, но оптимальная.

Литий характеризуется низкой температурой плавления (182 °C), низкой теплопроводностью (71 Вт/м·К в твердом состоянии и 43 Вт/м·К в жидком при температуре плавления) и высокой химической активностью. Генерация нейтронов в результате реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be сопровождается наработкой радиоактивного изотопа <sup>7</sup>Be. Взаимодействие протонного пучка с литием приводит к генерации 0,478 МэВ  $\gamma$ -квантов в результате неупругого рассеяния протонов на атомных ядрах лития,  $\gamma$ -квантов с энергий 16–19 МэВ при радиационном распаде ядра <sup>8</sup>Be реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>8</sup>Be и  $\alpha$ -частиц в результате термоядерных реакций <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ ) $\alpha$  и <sup>6</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>3</sup>He.

Оптимальная стационарная мишень представляется следующей.

Литиевый нейтроногенерирующий слой должен быть: i) тонким, таким, чтобы протоны тормозились в нем до порога генерации нейтронов (это позволит уменьшить сопутствующий поток 0,478 МэВ  $\gamma$ -квантов и уменьшить температуру на поверхности лития); ii) из чистого лития для максимального выхода нейтронов (выход нейтронов из гидрида, оксида и фторида лития меньше, чем из чистого лития, в 1,43, 2 и 3,3 раза соответственно); iii) в твердом состоянии для предотвращения распространения по установке паров лития и образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7. Подложка, на которую напыляют литиевый нейтроногенерирующий слой, должна быть: i) тонкой — это позволит поместить оптимальный замедлитель максимально близко к месту генерации нейтронов и сформировать лучший по качеству терапевтический пучок нейтронов; ii) интенсивно охлаждаемой, чтобы поддерживать литиевый слой в твердом состоянии при ее нагреве мощным протонным пучком; iii) стойкой к радиационным повреждениям; iv) малоактивируемой; v) простой в изготовлении; vi) легкосъемной для ее утилизации после активации.

Для создания оптимальной мишени необходимо было решить такие проблемы, как: i) напыление тонкого слоя чистого лития контролируемой толщины, ii) обеспечение эффективного теплосъема для сохранения лития в твердом состоянии при нагреве мощным протонным пучком, iii) нахождение материала подложки, максимально стойкого к радиационным повреждениям, iv) разработка конструкции мишени с возможностью легкого удаления подложки мишени с активированным литиевым слоем и v) утилизация активированной части мишени.

## 5.1. 1-й вариант мишени

Первый вариант мишени (рис. 5.1) представлял собой молибденовый диск толщиной 0,2 мм, диаметром 64 мм, приваренный диффузионной сваркой к ребрам диска из стали АРМКО. В этом стальном диске диаметром 74 мм, толщиной 4 мм сделаны 10 параллельных каналов глубиной 1 мм и шириной 3,5 мм. Толщина ребер между каналами везде равна 1,5 мм, за исключением центрального ребра толщиной 3 мм. Проведенные гидравлические испытания показали надежность сварки фольги к ребрам диска вплоть до давления воды в 4 атм.



Рис. 5.1. Мишень перед сборкой (слева) и после (в центре — вид со стороны протонного пучка, справа — с противоположной стороны)

Для охлаждения мишени выбран жидкий галлий, поскольку он позволяет поддерживать более низкую температуру поверхности мишени по сравнению с водой, не имеет ограничения на температуру охлаждающей поверхности в 100 °С и не катастрофически опасен в случае его вытекания в вакуумный объем. Система жидкометаллического охлаждения, включающая насос для прокачки жидкого металла, жидкометаллический контур с коммутационными устройствами, теплообменник, измеритель скорости металла и распределения давлений разработана, подготовлена и испытана (рис. 5.2). Изготовлена магнитная муфта, обеспечивающая бесконтактную передачу вращательного момента механическому насосу в вакуумированном и заполненном жидким металлом объеме жидкометаллического контура.



Рис. 5.2. Система жидкометаллического охлаждения (*a*), камера мишенного устройства с приемником пучка и подводами для теплоносителя (*б* и *в*)

Тепловые испытания мишени проведены на ускорителе электронов ЭЛВ при энергии электронов 1,4 МэВ и мощности до 20 кВт. С использованием водяного охлаждения достигнут съем тепла до 650 Вт · см<sup>-2</sup>. В процессе испытаний с жидкометаллическим охлаждением при нагреве 3 кВт электронным пучком произошло разрушение мишени. Через образовавшиеся отверстия в фольге и через отверстие для нижней термопары вытекла часть галлия. Для выяснения причин разрушения мишени молибденовая фольга отделена от стального приемника пучка. Обнаружено значительное разъедание стали АРМКО. Разъедания молибденовой фольги не обнаружено. Возможно, причиной повреждения мишени стало вытекание части галлия через отверстие для термопары в результате проедания стальной перегородки. Таким образом, использование жидкометаллического охлаждения привело к разрушению мишени вследствие значительной химической активности галлия, что указывает на отсутствие химической стойкости стали АРМКО к галлию при высокой температуре.

Дальнейшая перспектива обеспечения эффективного теплосъема состояла либо в экспериментальном нахождении материалов, стойких к галлию в течение длительного времени при высокой температуре, либо в нахождении решения использования воды для охлаждения.

## 5.2. 2-й вариант мишени

Новый изготовленный вариант мишени представлен на рис. 5.3. Приемник пучка — вольфрамовый диск толщиной 3 мм диаметром 80 мм с 13 расположенными параллельно с шагом 3,7 мм прямоугольными каналами для охлаждения размером  $3 \times 2$  мм, изготовленными электроискровым способом. Диск плотно прижимают к титановому корпусу без диффузионной сварки. Отказ от трудоемкой диффузионной сварки позволил получить более однородное температурное поле на поверхности мишени вследствие уменьшения толщины ребер с 1,5 до 0,7 мм и увеличения расстояния от поверхности мишени до охлаждемой теплоносителем поверхности с 0,2 до 1 мм.



Рис. 5.3. Нейтронообразующая мишень: 1 — титановый корпус, 2 — прижимной фланец, 3 — приемник пучка (*a*), фотография приемника пучка со стороны охлаждающих каналов (б)

Тепловые испытания мишени проведены с помощью омического нагревателя мощностью до 20 кВт. Омические нагреватели изготовлены из ниобиевой или танталовой пластины толщиной 0,1 мм, в которой электроискровым способом с зазором 0,2 мм нарезаны полоски шириной 2 мм в виде спирали Архимеда (рис. 5.4). Затем электрохимическим микродуговым методом нагреватель покрыт тонким слоем пятиокиси этих металлов (Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> или Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>; 5-10 мкм), обеспечивающим изоляцию напряжения не менее 300 В. Сопротивление нагре-



Рис. 5.4. Омический нагреватель

вателя составляет величину порядка 1 Ом. Токоввод обеспечивается молибденовыми стержнями, поджатыми пружинами. Нагреватель запитывается от стабилизированного источника током до 100 А. Нагреватель плотно прижимают к мишени через BeO-изолятор толщиной 1 мм

с помощью массивного термостойкого неорганического изолятора с малой теплопроводностью, затрудняющего теплоотвод в другую сторону. Мишень охлаждается течением дистиллированной воды в каналах со скоростью до 5 м/с. Температуру поверхности мишени измеряют термопарой, проложенной между изолятором и мишенью в углублении диска.



Рис. 5.5. Зависимость температуры поверхности мишени *T* от плотности мощности нагрева *q* при скорости охлаждающей воды 3 м/с: сплошная линия — экспериментально измеренная, пунктирная — расчетная для турбулентного течения без закипания

Результаты эксперимента представлены на рис. 5.5. На измеренной кривой видны три режима теплосъема: i) до  $250 \text{ Bt} \cdot \text{сm}^{-2}$  — турбулентное течение воды без закипания, которое хорошо согласуется с расчетом, іі) от 250 Вт  $\cdot$  см<sup>-2</sup> до 400 Вт  $\cdot$  см<sup>-2</sup> — турбулентное течение воды с пузырьковым кипением, когда температура практически не растет, и iii) свыше  $450 \text{ Bt} \cdot \text{см}^{-2}$  — турбулентное течение воды с пленочным кипением, когда происходит срыв теплосъема и температура начинает резко расти. При плотности мощности нагрева 318 Вт · см<sup>-2</sup> поверхность мишени нагревается до 200 °С при скорости воды 3 м/с, что несколько меньше расчетной в том числе и потому, что уже реализуется пузырьковое кипение, которое детектируется не только по плато на графике, но и по характерному звуку в момент проведения эксперимента. Конечно, теплосъем с пузырьковым кипением более эффективен, однако для получения более низкой температуры и из соображений безопасности рабочим режимом охлаждения следует выбрать режим охлаждения турбулентным потоком воды без закипания. Случайный локальный перегрев может привести к пузырьковому кипению, но это не даст значительного повышения температуры. Также достаточно протяженное по мощности плато, соответствующее пузырьковому кипению, обеспечивает почти двукратный запас до той мощности нагрева, при которой возможен срыв теплосъема и нежелательное разрушение мишени.

Проведенные тепловые испытания и расчеты позволяют уверенно констатировать, что при поглощении 25 кВт протонного пучка мишенью диаметром 10 см возможно поддержание литиевого слоя в твердом состоянии при охлаждении мишени турбулентным потоком воды со скоростью порядка 10 м/с.

#### 5.3. З-й вариант мишени

Третий вариант мишени, уже с возможностью напыления лития, представлен на рис. 5.6. Приемник пучка изготовлен из меди в виде



Рис. 5.6. Нейтроногенерирующая мишень с системой напыления лития: 1 — протонопровод, 2 — тарелка шибера, 3 — нагреватель, установленный на тарелку шибера, 4 — контейнер с литием, 5 — круговое отверстие для выхода паров лития, 6 — приемник пучка, на который напыляется литиевый слой (фотография приведена справа), 7 — сильфон, 8 и 9 — ввод и вывод воды для охлаждения

диска диаметром 122 мм, максимальной толщиной 8 мм (протонный пучок облучает поверхность диаметром 100 мм). Со стороны протонного пучка в нем сделано сферическое углубление на 2 мм радиусом 626 мм, с обратной стороны сделаны четыре канала спиралевидной формы глубиной 3 мм, шириной 6 мм<sup>1</sup>). Приемник пучка плотно

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) Геометрия каналов охлаждения повторена в бериллиевой мишени производства компании Сумитомо [104], используемой для лечения больных методикой БНЗТ в первых двух клиниках мира.

прижимают к корпусу мишени. Охлаждающая вода тангенциально вводится во внутреннюю полость корпуса мишени, раскручивается, как в циклоне <sup>1</sup>), и через отверстие в центре направляется в каналы приемника пучка и далее по двухзаходным спиралевидным каналам вытекает наружу. При давлении дистиллированной воды на входе 2 атм в каналах приемника пучка реализуется турбулентное течение воды (число Рейнольдса  $4 \cdot 10^4$ ) со скоростью 10 м/с, обеспечивая требуемый теплосъем и поддерживая литиевый слой в твердом состоянии вплоть до мощности нагрева 25 кВт. Расход воды в этом случае 3,5 м<sup>3</sup>/ч, вода нагревается на 8 °С.

Над мишенью размещена система напыления лития, изготовленная с использованием промышленно производимого шибера. На тарелку шибера 2 помещен нагреватель 3, а под тарелку установлен испаритель с круговой щелью 5, в который закладывается литиевый контейнер 4. Перед напылением тарелка шибера выезжает в протонопровод и сдвигается в направлении к мишени на 5 мм, используя механизм уплотнения шибера. В результате такого сдвига тарелка упирается в сильфон 7, что ограничивает объем напыления. Затем включают нагреватель, и пары лития распространяются через круговую щель 5. Поскольку сильфон теплоизолирован и в процессе напыления нагревается, то напыления на сильфон не происходит. Напыление осуществляется только на подложку мишени 6, которая охлаждается водой.

Мишенный узел изготовлен из нержавеющей стали и крепится к установке посредством байонетного разъема, который позволяет быстро снимать мишенный узел и, перевернув его, высвобождать приемник пучка с литиевым слоем.

Перед напылением в нагреватель закладывают литиевый контейнер [133], представляющий собой тонкостенный замкнутый алюминиевый корпус, заполненный чистым литием. Процедура изготовления литиевого контейнера следующая. Собственно литий в чистом виде в достаточном объеме хранится внутри специально изготовленного сильфона, помещенного в прочный корпус. Объем между сильфоном и корпусом заполнен маслом. С помощью плунжерного насоса давление масла поднимают, происходит сжатие сильфона, и литий, продавливая пробку, выходит наружу через фильеру в виде проволоки диаметром 4 мм. Литиевую проволоку разрезают на части и плотно оборачивают в тонкую алюминиевую фольгу. Алюминиевая фольга предотвращает взаимодействие лития с воздухом и позволяет отказаться от необходимости работать в инертной среде для закладки лития в нагреватель. После помещения в тарелку шибера контейнера с литием

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) Геометрия циклона скопирована для использования в охлаждении дивертора первой термоядерной электростанции DEMO [105].

и откачки до вакуума  $10^{-3}$  Па включается нагреватель. Выяснено, что для испарения лития не требуется нагревать контейнер до температуры плавления алюминия 660 °C — достаточно нагревать до меньшей температуры, например до 460 °C. Вероятнее всего, при нагревании литий вступает во взаимодействие с алюминием, и этот сплав плавится при меньшей температуре. Поскольку при этом давление паров алюминия составляет порядка  $10^{-10}$  Па, а лития —  $10^{-1}$  Па, то испаряется только литий. Пары лития вылетают через круговое отверстие диаметром 7 см шириной 0,6 см, вырезанное внизу под тарелкой шибера, и осаждаются на охлаждаемую подложку мишени.

Для измерения радиального распределения толщины напыленного литиевого слоя предложена новая методика. Необходимость такого предложения связана с тем, что, во-первых, литий — очень активный металл, моментально образующий соединения при помещении его в воздушную среду, а во-вторых, многие стандартные методики измерения в вакууме не применимы, поскольку в непосредственной близости от охлаждаемой мишени находится испаритель с высокой температурой. Так, невозможно использовать метод определения массы напыленного на пьезокерамику лития по изменению собственной частоты колебаний керамики, поскольку процесс напыления на керамику существенно отличается от напыления на охлаждаемую медную подложку вследствие разных температур.

Суть предлагаемого метода состоит в измерении электрической проводимости дистиллированной воды, в которой растворяют слои лития, напыленные на тонкие свидетели из того же материала, что и мишень, и находящиеся в хорошем тепловом контакте с мишенью в процессе напыления. Очевидное преимущество этого метода в том, что электрическая проводимость воды зависит только от массы растворенного лития и не зависит от состояния лития (чистый или в составе какого-либо соединения — гидрида, нитрида или оксида). Измерения проведены на промышленно производимом оборудовании — иономере-кондуктометре Анион 410.

Для определения толщины литиевого слоя на охлаждаемую мишень диаметром 10 см в два ряда (крестом) были выложены свидетели площадью 1 см<sup>2</sup> каждый, которые через индий-галлиевое соединение имели хороший тепловой контакт с мишенью. Следует заметить, что если свидетель просто положить на поверхность, то напыляется значительно более тонкий слой, что связано с бо́льшей температурой свидетеля. После заложения в тарелку шибера контейнера с литием и откачки до вакуума  $10^{-3}$  Па включают нагреватель, и происходит напыление лития. На рис. 5.7, *а* приведена фотография мишени, на которой расположены свидетели, после окончания процедуры напыления. После напыления рабочий объем заполняется воздухом. Мишень,



Рис. 5.7. Фотография мишени со свидетелями, сделанная через окно в вакуумной камере после напыления лития (*a*); радиальное распределение литиевого слоя: кружки — измеренное, точечная линия — расчетное (б)

на которую напылен литий, снимается, и свидетели помещаются в воду. По проводимости воды измеряется количество лития, напыленного на свидетеля. На рис. 5.7,  $\delta$  приведено измеренное распределение толщины литиевого слоя. Видно, что распределение достаточно хорошо согласуется с простым расчетом бесстолкновительного разлетания паров лития из кругового отверстия. Статистический разброс был порядка 10%, он меньше расчетной разницы толщины слоя в 20%. Поскольку этот разброс, скорее всего, связан с разными тепловыми контактами между свидетелем и мишенью, однородность слоя может быть только лучше.

Также проведены прямые измерения толщины литиевого слоя микрометром путем сравнения толщины свидетеля до растворения слоя в воде и после. Результаты этих измерений совпадают с результатами определения толщины слоя по проводимости воды, что указывает на то, что получаемый литиевый слой не пористый и его плотность соответствует плотности кристаллического лития 0,54 г/см<sup>3</sup>.

Этот вариант мишени использовали на установке с самого первого дня генерации нейтронов 5 марта 2008 г. до марта 2018 г.

## 5.4. 4-й вариант мишени

Четвертый вариант мишени призван был решить проблему радиационного блистринга — он сделан из набора тонких танталовый трубочек, уложенных в два ряда (рис. 5.8). Однако при тестировании мишени пучком протонов с плотностью мощности 1,5 кВт/см<sup>2</sup> произошло прожигание одной из трубочек, и вода стала поступать в вакуумную камеру установки.



Рис. 5.8. Мишень из танталовых трубочек: *a*) трехмерное изображение, *б*) фотография мишени, *в*) фотография мишени с напыленным литием

#### 5.5. 5-й вариант мишени

В пятом варианте мишени, используемом на установке с марта 2018 г., претерпела изменение концепция мишенного узла. Он выполнен в виде алюминиевой трубы с минимальным внутренним диаметром 100 мм (рис. 5.9).С помощью шибера со стандартным соединением CF100 узел стыкуют к установке или к разработанному стенду напыления лития. Мишенный узел длиной 443 мм без патрубков используют для размещения в системе формирования пучка с замедлителем из фторида магния, а с двумя патрубками под углом 22° к оси — для проведения научных исследований. Мишенный узел длиной 131 мм используют для проведения научных исследований; этот узел оснащен двумя или тремя патрубками для диагностического оборудования или наблюдательных окон, расположенных под углом 45° или 52,5° к оси. На торец мишенного узла уплотняют медный диск диаметром 144 мм, толщиной 8 мм. Со стороны протонного пучка на медный диск термическим способом напыляют тонкий слой лития кристаллической плотности диаметром 84 мм. С обратной стороны медного диска внутри диаметра 122 мм сделаны четыре двухзаходных спиралевидных канала глубиной 3 мм, шириной 6 мм, с перегородкой между каналами



Рис. 5.9. Мишенные узлы: для размещения внутри системы формирования пучка нейтронов с замедлителем из фторида магния (слева), для проведения научных исследований с возможностью наблюдения за мишенью (справа): 1 — шибер, 2 — патрубки, 3 — подача охлаждения

толщиной 1 мм для охлаждения водой (так же, как в третьем варианте мишени). К обратной стороне медного диска прижимают плоский алюминиевый диск с отверстием в центре для подачи охлаждающей воды и двумя отверстиями по периферии для отвода воды 3. При характерном расходе воды 15–17 л/мин в каналах охлаждения реализуется турбулентное течение воды со скоростью 3,5–4 м/с, обеспечивающее эффективный теплосъем.

#### 5.6. Стенд напыления лития

Напыление лития на мишень осуществляют на отдельном разработанном стенде (рис. 5.10). Стенд напыления лития — это вакуумная камера со средствами вакуумной откачки, в которой на ввод движения с шаговым двигателем установлен титановый стакан с плоским керамическим нагревателем инфракрасного излучения QFE.

Литий, используемый для напыления, хранят в перчаточном боксе MBraun MB-200MOD (MBraun, Германия), заполненном аргоном особой чистоты 99,9999%. Для напыления используют природный литий или литий, обогащенный изотопом литий-7, производства Новосибирского завода химконцентратов. В партии природного лития содержание лития составляет 99,956%; остальные 0,044% — примеси Na < 0,04%, K < 0,005%, Ca < 0,03%, Mg < 0,02%, Mn < 0,02%, Mn < 0,001%, Fe < 0,005%, Al < 0,003%, SiO<sub>2</sub> < 0,01% и N < 0,05%.



Рис. 5.10. Стенд напыление лития: *a*) 1 — мишенный узел, 2 — турбомолекулярный насос, 3 — датчик температуры, 4 — ЛАТР, 5 — шаговый двигатель, 6 — форвакуумный насос, 7 — перчаточный бокс с микроскопом; б) вид сверху на нагреватель, в который закладывают литий, закрытый защитным экраном; *в*) фотография мишени с напыленным литием

Содержание изотопа 7 в природном литии варьируется от 92,41 % [106] до 92,58 % [107]; мы будем далее полагать содержание лития-7 в природном литии, равное среднему значению, а именно 92,5 %. Перед напылением необходимое количество лития с точностью 0,1 мг взвешивают на лабораторных микровесах OHAUS (США) внутри перчаточного бокса. После взвешивания литий пакуют в герметичную пробирку, извлекают из перчаточного бокса и вскрывают пробирку непосредственно перед укладкой лития на дно титанового стакана в стенде напыления лития. Литий на дне титанового стакана закрывают специальным экраном с щелями для равномерного напыления лития вместе с мишенный узел на стенд. Затем стенд напыления лития вместе с мишенным узлом откачивают до давления  $10^{-4}$  Па, включают нагреватель и осуществляют термическое напыление лития на поверхность мишени, охлаждаемую сжатым воздухом. Напыление лития обычно происходит в течение 2 ч при температуре нагревателя около 500 °C.

По прошествии двух часов нагреватель выключают и выводят титановый стакан из мишенного узла с помощью шагового двигателя, после чего закрывают шибер на мишенном узле. Узел с напыленным литием и с сохранением вакуума отсоединяют от стенда напыления, переносят на установку и подсоединяют к ней.

# 5.7. Метод in situ измерения толщины слоя лития

Оптимальной толщиной слоя лития является такая, когда энергия протонов на выходе из лития равна или чуть ниже 1,882 МэВ — порога реакции <sup>7</sup>Li(*p*, *n*)<sup>7</sup>Be. Более толстый слой не увеличит выход нейтронов, но увеличит нежелательный поток 478 кэВ фотонов, излучаемых в реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития <sup>7</sup>Li(*p*, *p*' $\gamma$ )<sup>7</sup>Li. Более тонкий слой уменьшит выход нейтронов. По этой причине актуально измерение толщины литиевого слоя мишени без его повреждения.

Предпосылкой к разработке нового метода измерения толщины лития стало измерение выхода  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,65 до 2,225 МэВ<sup>1</sup>). Суть предлагаемого метода измерения толщины слоя лития состоит в облучении мишени протонами и измерении  $\gamma$ -спектрометром скорости счета  $\gamma$ -квантов энергией 478 кэВ, испускаемых при неупругом рассеянии протона на атомном ядре лития. При измерении применяют две литиевые мишени: исследуемую и толстую. Толстой называют мишень, в которой протоны затормозились в литии до энергии ниже 478 кэВ.

Если исследуемая мишень не будет толстой, то выход  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ из нее будет меньше, чем из толстой. Измерив отношение скорости счета  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ из исследуемой и толстой мишени, A, можно определить толщину лития h, поскольку скорость потери энергии S протоном в литии известна; она зависит от его энергии E (кэВ) следующим образом [108]:

$$S = rac{S_{
m low} \cdot S_{
m high}}{S_{
m low} + S_{
m high}}$$
 эВ/(10<sup>15</sup> атомов/см<sup>2</sup>),

где

$$S_{\text{low}} = 1,6E^{0,45}, \quad S_{\text{high}} = \frac{725,6}{E} \ln\left(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578E\right).$$

<sup>1)</sup> См. главу «Получение фундаментальных знаний».

Оптимальным представляется проведение измерений при энергии, немного ниже порога реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be, например 1,85 МэB, поскольку не будет нейтронов, способных повредить спектрометр и инициировать дополнительный поток  $\gamma$ -квантов, выход  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэB будет максимальным. Для удобства, используя данные, представленные на рис. 9.15, a, построим график зависимости толщины лития h от отношения интенсивностей излучения  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэB из исследуемой и толстой мишени A, измеренного при энергии протонов 1,85 МэB. Для каждой энергии  $E_i$  найдем  $A_i = \frac{Y_i}{Y_{1,85}}$ , где  $Y_i$  — выход  $\gamma$ -квантов при энергии протонов  $E_i$ ,  $Y_{1,85}$  — выход  $\gamma$ -квантов при энергии протонов 1,85 МэB. Затем, используя приведенную выше формулу скорости потери энергии протоном в литии, находят толщину  $h_i$ , на которой протон теряет энергию с 1,85 МэB до  $E_i$ .



Рис. 5.11. График определения толщины слоя лития h от измеренного отношения интенсивности излучения  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ из исследуемой и толстой мишени, A, при энергии протонов 1,85 МэВ. Через экспериментальные точки в диапазоне A от 0 до 0,9 проведена линия тренда. Приведено также уравнение линии тренда и величина достоверности аппроксимации  $R^2$ 

На рис. 5.11 видно, что в диапазоне A от 0 до 0,9 экспериментально измеренные значения h(A) хорошо аппроксимируются выражением, удобным для практического применения: h (мкм) = 45,698  $A^2$  + + 56,281 A. При энергии протонов 1,85 МэВ предложенная методика позволяет проводить измерения толщины слоя лития вплоть до 100 мкм. Измерение бо́льшей толщины требует увеличения энергии протонов и, как следствие, использования  $\gamma$ -спектрометра, стойкого к потоку нейтронов.

Практическая реализация предложенного метода измерения толшины слоя лития проведена на установке. Мишенный узел с литиевой мишенью подсоединяют к установке через сильфон, что позволяет сдвигать ее электрическим линейным актуатором Bohua (Китай) в горизонтальной плоскости на расстояние до 5 см в обе стороны. Точность установки положения актуатора составляет 0,5 мм. Смещение мишени обеспечивает ее сканирование протонным пучком (диаметр 2 мм) вдоль диаметра. Положение протонного пучка на мишени контролируют с помошью люминесценции поверхности литиевой мишени. Ток протонов, облучающих мишень, измеряют омическим делителем напряжения, подсоединенным к мишенному узлу, электрически изолированному от установки. Интенсивность *γ*-излучения измеряют HPGe *γ*-спектрометром. Спектрометр помещен внутрь свинцового коллиматора с внешним диаметром 27 см, длиной 50 см, толщиной стенки 5 см. Спектрометр вместе с коллиматором защищают от излучения ускорителя стенкой толщиной 23 см, выстроенной из бетонных блоков. Спектрометр откалиброван по полной чувствительности радионуклидным источником фотонного излучения закрытого типа Cs-137 с активностью 1,6 · 10<sup>8</sup> Бк (достоверность 10%) по линии излучения 661,7 кэВ. При проведении калибровки радионуклидный источник был помещен на поверхность медного диска мишени в его центре — максимально близко к месту излучения  $\gamma$ -квантов из лития. Относительная чувствительность спектрометра откалибрована эталонными источниками фотонного излучения из набора ОСГИ-ТР (ЗАО «Ритверц», Россия): Na-22, Mn-54, Co-60, Ba-133, Cs-137, Eu-152 и Bi-207.

В полученной конфигурации поверхность литиевой мишени сканируют пучком протонов диаметром 2 мм, который визуально контролируют видеокамерой Hikvision, установленной на патрубок с окном из плавленого кварца. Видеокамера регистрирует нетепловое свечение мишени, обусловленное люминесценцией поверхности литиевой мишени под действием высокоэнергетичных протонов.

Измерения проведены для трех мишеней, на которые напылен визуально однородный слой лития диаметром 90 мм со средней толщиной 200, 68 и 7,4 мкм. Средняя толщина литиевого слоя определена из массы лития, закладываемого при напылении, с учетом 2% потерь, ранее определенных экспериментально.

Сразу после напыления литиевого слоя мишенный узел переносят с сохранением вакуума со стенда напыления на экспериментальную установку и облучают протонным пучком с энергией 1,85 МэВ и средним током, проходящим через коллиматор, 11–14 мкА.

Протоны с начальной энергией 1,85 МэВ тормозятся в литии до 478 кэВ, порога реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, p'\gamma){}^{7}\text{Li}$ , на длине 126 мкм (согласно приведенной выше формуле). Поэтому одну из мишеней, со средней

толщиной лития 200 мкм, считаем толстой, остальные две — исследуемыми.

В процессе облучения мишень с помощью актуатора перемещают в горизонтальном направлении с шагом 0,5 см в диапазоне  $\pm 5$  см относительно оси ускорителя. После каждого перемещения мишени  $\gamma$ -спектрометром измеряют скорость счета  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ, генерируемых в реакции <sup>7</sup>Li( $p, p' \gamma$ )<sup>7</sup>Li. Набор статистики проводят в течение 2 мин; ошибка измерения скорости счета не превышает 0,5 %. Полученные значения нормируют на средний ток протонов. Далее вычисляют A — отношение нормированной скорости счета  $\gamma$ -квантов, испускаемых из исследуемой мишени, к нормированной скорости счета  $\gamma$ -квантов, испускаемых из толстой мишени. Затем по формуле h (мкм) = 45,698  $A^2$  + 56,281 A определяют толщину лития.

На рис. 5.12 представлены результаты измерения радиального распределения толщины лития исследуемых мишеней. Точность измерения



Рис. 5.12. Радиальное распределение толщины лития: мишени со средней толщиной слоя лития 68 мкм (*a*), 7,4 мкм (*б*): • — измеренное по выходу *γ*-квантов, × — измеренное по выходу нейтронов

по оси абсцисс определяется размером протонного пучка на мишени, в данном случае 2 мм, по оси ординат — преимущественно стабильностью тока протонного пучка, в данном случае от 3 до 5 %.

Для мишени со средней толщиной слоя лития 7,4 мкм оказалось возможным измерить его относительную толщину по выходу нейтронов. Для этого энергию протонов увеличивают до 2,05 МэВ и дозиметром измеряют мощность дозы нейтронного излучения. При энергии 2,05 МэВ протоны теряют в литии энергию со скоростью 0,14 кэВ/мкм и затормозятся на 50 кэВ на толщине 7 мкм. В этом диапазоне энергий протонов сечение реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be с хорошей точностью постоянно (от 295 мб при 2,00 МэВ до 309 мб при 2,05 МэВ), поэтому выход нейтронов пропорционален толщине литиевого слоя. На рис. 5.12, *б* вместе с результатом измерения толщины лития по выходу  $\gamma$ -квантов для сравнения представлен результат измерения по выходу нейтронов. Видно, что результаты измерений хорошо согласуются.

По результатам измерения толщины литиевого слоя была изменена геометрия нагреваемого стакана в стенде напыления лития так, чтобы напыляемый слой лития был более равномерным. Для этого произведено численное моделирование процесса напыления с различной геометрией нагреваемого стакана. Моделирование выполнено в предположении бесстолкновительного движения атомов лития и диффузного рассеяния на стенках нагреваемого стакана и закрывающем экране. В результате моделирования определена оптимальная геометрия напыления: внутренний диаметр титанового стакана 84 мм, высота 70 мм, закрывающий экран в форме диска диаметром 36 мм с отверстием 0,3 мм в центре, расположенный на высоте 3 мм от поверхности стакана (см. рис. 5.13, б). Титановый стакан оснащен медным кожухом



Рис. 5.13. Исходный стакан нагревателя вместе с закрывающим экраном (*a*), нагревательный узел после модернизации (*б*): 1 — стакан нагревателя, 2 — закрывающий экран, 3 — литий, 4 — нагреватель QFE, 5 — медный кожух

с внутренним диаметром 94 мм, который играет роль терморазвязки. На рис. 5.13 представлены фотографии стакана нагревателя вместе с закрывающим экраном до и после модернизации.



на конфокальном сканирующем профилометре,  $\Box$  — измеренное по выходу  $\gamma$ -квантов

После модернизации стенда напыления вновь измерено распределение толщины литиевого слоя. Результат измерения представлен на рис. 5.14. Там же приведен результат измерения толщины литиевого слоя с помощью конфокального сканирующего профилометра Института автоматики и электрометрии СО РАН (Новосибирск, Россия). Как нами было выяснено, измерениям профилометром можно доверять: хотя толщина лития при его экспозиции на воздух растет, но этот рост не превышает 4%. Видно, что результаты измерений хорошо согласуются.

Таким образом, проведенные исследования и разработанные технологии позволяют обеспечивать напыление однородного литиевого слоя контролируемой толщины.

## 5.8. Исследование элементного состава литиевого слоя мишени

Исследование элементного состава литиевого слоя мишени и его изменения по мере облучения пучком протонов проведено на установке. Для определения элементного состава образца используют метод спектроскопии ионного рассеяния [109]. Суть метода заключается в облучении мишени пучком протонов и измерении энергетического спектра обратно рассеянных протонов, теряющих энергию в результате упругого и неупругого рассеяния на атомных ядрах мишени. Величина потери энергии характеризуется атомной массой элемента мишени, углом рассеяния, глубиной залегания и рассчитывается теоретически.

Для определения глубинного распределения элементного состава исследуемого образца используют программу SIMNRA v.7.03 (Мах Planck Institute for Plasma Physics, Germany) [110]. Для измерения интенсивности и энергии обратно рассеянных протонов на один из патрубков мишенного узла, расположенный под углом 135° к оси пучка, через шибер установлен спектрометр  $\alpha$ -излучения на основе кремниевого детектора ПДПА1К и цифрового спектрометрического устройства ЦСУ1К (Институт физико-технических проблем, Дубна. Россия). Плошадь чувствительной поверхности детектора S = $= 20 \text{ мм}^2$ , энергетическое разрешение составляет 13 кэB, энергетический эквивалент шума — 7 кэВ, емкость — 30 пФ, толщина входного окна — 0,08 мкм, стандартный естественный фон в диапазоне 3-8 M  $_{9}\text{B} - 0,15 \text{ имп/см}^2 \cdot \text{ч}$ . При проведении измерений ток пучка протонов уменьшают введением охлаждаемого коллиматора с диаметром отверстия 1 мм. Поскольку пучок характеризуется угловой расходимостью ±1,5 мрад, его поперечный размер на поверхности литиевой мишени, расположенной в 4 м за коллиматором, составляет величину ~10 мм. Положение протонного пучка на мишени контролируют по люминесценции лития, регистрируемой видеокамерой Hikvision. Ток пучка протонов, облучающих мишень, измеряют омическим делителем напряжения, подсоединенным к мишенному узлу, электрически изолированному от установки. Мишенный узел с литиевой мишенью с помощью шиберов подсоединен к установке через сильфон, что позволяет сдвигать ее в горизонтальной плоскости относительно оси установки электрическим линейным актуатором Bohua (Китай) на расстояние до 5 см в обе стороны. Точность установки положения актуатора составляет 0,5 мм. Мощность дозы нейтронного излучения измеряют нейтронным дозиметром БДМН10007 (ООО «Доза», Россия), размещенным на стене радиационно-защищенного помещения на расстоянии 5,4 м от мишени под углом 22° к направлению пучка протонов.

Для исследования чистоты свеженапыленного литиевого слоя стандартным способом изготавливают литиевые мишени и измеряют энергетический спектр обратно отраженных протонов. Характерный спектр обратно отраженных протонов, полученный при энергии протонов  $1000 \pm 2$  кэВ, токе  $2,6 \pm 0,3$  мкА, времени набора статистики 300 с и толщине слоя лития 30 мкм, представлен на рис. 5.15. На рисунке также представлен результат расчета программой SIMNRA при заданной толщине слоя лития 30 мкм, оксида лития 37 нм и углерода 0,9 нм поверх основного слоя. Видно, что литий покрыт тонким слоем оксида лития (обычно от 10 до 50 нм) и тонким слоем углерода (обычно от 0,5 до 2 нм).

Сигналы, обусловленные рассеянием протонов на кислороде и углероде, имеют вид отдельно стоящих узких пиков. Данное обстоятель-



Рис. 5.15. Спектр обратно отраженных протонов для слоя свеженапыленного лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 — экспериментальные данные, 2 — расчетные, полученные с помощью программы SIMNRA, Li — сигнал от протонов, отраженных от лития, С — от углерода, О — от кислорода

ство указывает на то, что эти слои тонкие и расположены на поверхности либо внутри лития.

Для доказательства того, что слой углерода находится на поверхности лития, использован узкий резонанс в сечении упругого рассеяния протона на атомном ядре <sup>12</sup>С, представленном на рис. 5.16, *а*. Видно, что углерод очень эффективно рассеивает протон с энергией 1,74 МэВ и практически не рассеивает протон с энергией 1,69 МэВ. Подобный яркий резонанс присутствует исключительно в сечении упругого взаимодействия протона с углеродом; для сравнения на рис. 5.16, *б* приведено сечение упругого рассеяния протона на ядре <sup>16</sup>О.

Варьируя энергию протонов от 1,6 до 1,75 МэВ, измеряют интенсивность потока обратно отраженных протонов на атомных ядрах углерода. Результат измерения представлены на рис. 5.17. Видно, что если энергия протонов составляет 1,74 МэВ, то сигнал углеродного пика максимален, если 1,69 МэВ, то минимален. Это означает, что слой углерода находится на поверхности лития. Если бы углерод был внутри лития, то рассеянному протону необходимо было бы потерять часть энергии на прохождение литиевого слоя, так что экстремумы в интенсивности сигнала были бы сдвинуты в область меньших энергий относительно экстремумов в сечении.

Таким образом, установлено, что поверхность литиевого слоя при его напылении на стенде покрывается тонкими слоями оксида лития и углерода.



Рис. 5.16. Сечение упругого рассеяния протона на атомном ядре  $^{12}{\rm C}$  (a) и  $^{16}{\rm O}$  (б)



Рис. 5.17. Зависимость интенсивности пика углерода У от энергии протонов Е


Рис. 5.18. Спектр, регистрируемый  $\alpha$ -спектрометром при энергии протонов 1,75 МэВ: a — результаты моделирования, b — экспериментальные данные. Li — сигнал обратно отраженных протонов от лития, C — от углерода, O от кислорода, I — от тяжелых примесей в составе лития, 2 — продукты ядерной реакции <sup>6</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>3</sup>He, 3 — продукты ядерной реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He

Согласно паспортным данным в используемом нами природном литии присутствует 0,044 % тяжелых примесей. На рис. 5.18 представлен спектр обратно отраженных протонов с энергией 1,75 МэВ, на котором отчетливо видны сигналы протонов, отраженных от тяжелых примесей внутри слоя лития, а также продуктов ядерных реакций  ${}^{6}\text{Li}(p,\alpha)^{3}\text{He}$ и  ${}^{7}\text{Li}(p,\alpha)^{4}\text{He}^{1}$ ). В измеренном спектре отчетливо видна ступенька, обусловленная тяжелыми примесями (1 на рис. 5.18), которая хорошо моделируется программой SIMNRA, в предположении, что содержание примесей в литии соответствует паспортным данным.

В воздушной среде литий быстрее вступает в реакцию с азотом, однако в спектре обратно отраженных протонов со свеженапыленного лития данный элемент не обнаружен. Проведено дополнительное исследование по изучению накопления азота в литиевой мишени. Сразу после напыления лития мишенный узел с остаточным вакуумом  $5 \cdot 10^{-3}$  Па перенесен на установку. Литиевую мишень облучают пучком 1 МэВ протонов током 6 мкА и  $\alpha$ -спектрометром измеряют спектр обратно отраженных протонов. Далее в мишенный узел напускают азот до давления 1 атм и оставляют на 10 мин, потом откачивают азот

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup> Обратим внимание на то, что в программе SIMNRA отсутствуют данные о сечении реакции <sup>7</sup>Li $(p, \alpha)^4$ He, возможно, из-за того, что сечение, представленное в базе данных JENDL4.0, примерно в два раза больше по величине сечений, представленных в базах данных ENDF/BVIII.0 и TENDL2019. Для выяснения достоверного результата нами измерено сечение этой реакции — результат изложен в главе «Получение фундаментальных знаний».



Рис. 5.19. Зависимость концентрации примесей от напуска азота, 1 — спектр обратно отраженных протонов от чистой мишени, 2 — после напуска азота на 10 мин, 3 — после напуска азота на 18 ч, Li — протоны, отраженные от лития, С — от углерода, О — от кислорода (для наглядности спектры 2 и 3 приподняты)

и измеряют спектр обратно отраженных протонов. Такую же процедуру повторяют для 18-часовой экспозиции азота в мишенном узле. Результаты измерений представлены на рис. 5.19. Видно, что присутствуют только сигналы от углерода и кислорода, сигнала от азота нет. Предположено, что пленка оксида кислорода и углерода на поверхности лития мешает азоту взаимодействовать с литием.



Рис. 5.20. Энергетический спектр заряженных частиц, регистрируемый  $\alpha$ -спектрометром под углом 135° при облучении литиевой мишени 0,4 МэВ дейтронами: 1 — отраженные от мишени дейтроны, 2 — продукты реакции  ${}^{16}O(d, \alpha){}^{14}N$ , 3 —  ${}^{6}Li(d, p_1){}^{7}Li^*$ , 4 —  ${}^{6}Li(d, p_0){}^{7}Li$ , 5 —  ${}^{7}Li(d, n\alpha){}^{4}$ Не и распада образующегося  ${}^{5}$ Не, 6 —  ${}^{7}Li(d, \alpha){}^{5}$ Не, 7 —  ${}^{6}Li(d, \alpha){}^{4}$ Не. Стрелкой указано место расположения протонов как продуктов реакции  ${}^{14}N(d, p){}^{15}N$ 

Отсутствие азота в литиевой мишени подтверждает также результат измерения энергетического спектра продуктов ядерных реакций при облучении тонкой литиевой мишени пучком дейтронов. На рис. 5.20 представлен измеренный спектр заряженных частиц при энергии дейтронов 0,4 МэВ. На нем видны: дейтроны, отразившиеся от медной подложки (1),  $\alpha$ -частицы из реакции  ${}^{16}O(d, \alpha){}^{14}N$  (2), протоны из реакций  ${}^{6}Li(d, p_1){}^{7}Li^*$  (3) и  ${}^{6}Li(d, p_0){}^{7}Li$  (4),  $\alpha$ -частицы из реакции  ${}^{7}Li(d, \alpha){}^{4}He$  и при распаде образующегося  ${}^{5}He$  (5), из реакции  ${}^{7}Li(d, \alpha){}^{5}He$  (6) и реакции  ${}^{6}Li(d, \alpha){}^{4}He$  (7). Полностью отсутствуют протоны как продукты реакции  ${}^{14}N(d, p){}^{15}N$ , если бы азот был в литиевой мишени (на рис. 5.20 место пика протонов из реакции  ${}^{14}N(d, p){}^{15}N$  отмечено стрелкой).

Наблюдая отсутствие реакции литиевой мишени с азотом, изучили устойчивость мишени к атмосферному воздуху. Измерение спектра проведено сразу после напыления лития с сохранением вакуума в мишенном узле ( $\leq 10^{-3}$  Па). Затем в мишенный узел напустили воздух и откачали его через 1 мин, после чего вновь проводили измерения  $\alpha$ -спектрометром. Эксперимент повторили для времени экспозиции на воздухе: 10 мин, 1 ч, 24 ч, неделя. Температуру и влажность воздуха контролировали датчиком температуры и влажности DHT11; температура воздуха равна  $23 \pm 1$  °C, влажность —  $50 \pm 20$ %. Результаты измерения представлены на рис. 5.21.



Рис. 5.21. Спектры литиевой мишени, регистрируемые  $\alpha$ -спектрометром при облучении 1 МэВ протонами. Время экспозиции на воздухе: 1 - 0 мин, 2 - 1 мин, 3 - 10 мин, 4 - 1 ч, 5 - 24 ч, 6 - неделя

Анализируя спектры, можно заметить, что с увеличением времени экспозиции на воздухе накапливается и кислород, и углерод. Чем дольше мишень контактирует с воздухом, тем большее количество кислорода и углерода оседает на поверхности, причем скорость накопления кислорода выше. Со временем спектр протонов, отраженных от кислорода, становится более пологим. Это означает, что кислород начинает углубляться в материал мишени. Количество углерода к концу эксперимента возросло в 25 раз, а кислорода — в 1300 раз. Такое накопление примесей приводит к существенному уменьшению выхода нейтронов, т. е. делает мишень непригодной к эксплуатации.

Аналогичный эксперимент проведен зимой, когда температура на улице отрицательная и в помещении включено отопление, так что влажность воздуха составляет 10%. Результат, представленный на рис. 5.22, получился кардинально отличающимся — длительная экспозиция литиевой мишени на воздухе не приводит к существенному накоплению примесей. Видно, что в течение дня нахождения на воздухе происходит незначительное накопление примесей на поверхности лития.

Обработка экспериментальных результатов позволяет установить, что через 20 ч нахождения литиевой мишени на воздухе с низкой влажностью толщина слоя оксида лития увеличилась с 38 до 140 нм,



Рис. 5.22. Спектры литиевой мишени, регистрируемые *α*-спектрометром при облучении протонами: *a*) 1,65, *б*) 1,69, *в*) 1,74 МэВ. Время экспозиции на воздухе: *1* – 0 мин, *2* – 10 мин, *3* – 40 мин, *4* – 20 ч

слоя углерода — с 2 до 7 нм. Такое накопление примесей практически не влияет на выход нейтронов. Следовательно, кратковременная экспозиция литиевой мишени на сухой воздух не ухудшает ее нейтроногенерирующие свойства, что может быть учтено при разработке технологии поставки литиевых мишеней от производителя потребителю.

Конечно, длительная экспозиция литиевой мишени в сухом воздухе приводит к существенному накоплению примесей, ухудшающих ее нейтроногенерирующие свойства. В частности, в данном эксперименте через неделю толщина слоя оксида лития увеличилась до 2200 нм, слоя углерода — до 50 нм.

Далее изучили, какие изменения в литиевом слое мишени происходят после ее облучения протонами. Мишень с толщиной лития ~30 мкм в течение 4 дней облучали пучком протонов с энергией 1,8 МэВ, 0,5 мА, плотностью мощности 1,1 кВт/см<sup>2</sup> и измеряли



Рис. 5.23. Зависимость концентрации оксида лития (*a*) и углерода (б) от интеграла тока протонов

элементный состав мишени  $\alpha$ -спектрометром до и после облучения. Результаты представлены на рис. 5.23. Видно, что количество оксида лития и углерода растет во время облучения и выходит на насыщение. Содержание углерода на поверхности мишени увеличилось в 3 раза: с  $(11 \pm 5) \cdot 10^{15}$  ат/см<sup>2</sup> до  $(35 \pm 20) \cdot 10^{15}$  ат/см<sup>2</sup>, кислорода — в 4 раза: с  $(80 \pm 40) \cdot 10^{15}$  ат/см<sup>2</sup> до  $(300 \pm 150) \cdot 10^{15}$  ат/см<sup>2</sup>. Такая точность обусловлена тем, что при разной энергии протонов получается разная концентрация примесей, что может быть связано с неточными данными о сечениях, заложенных в программу SIMNRA. Наличие примесей уменьшает выход нейтронов на 0,86% (0,06% — углерод, 0,8% — кислород). Накопленные примеси слабо влияют на выход нейтронов. Более того, они служат для литиевой мишени защитной пленкой от проникновения, например, азота.

В продолжение эксперимента проведено облучение мишени при повышенной плотности мощности протонного пучка 3,4 кВт/см<sup>2</sup> (1,8 МэВ, 1,5 мА) в течение 3,5 ч. При такой плотности мощности пучка температура медной подложки мишени, измеренная термосопротивлением, составила 240 °С, и литий под пучком стал жидким (температура плавления лития равна 182 °С). Хотя поверхность литиевой мишени располагается вертикально, литий не стекает. Наблюдение за поверхностью мишени с помощью видеокамеры позволяет предположить, что, конечно, литий стал жидким, но он оказался заключен между медной подложкой мишени и твердым слоем оксида лития. Энергетический спектр обратно рассеянных протонов перед облучением мишени пучком протонов с плотностью мощности 3,4 кВт/см<sup>2</sup> и после облучения представлен на рис. 5.24.

Помимо сигналов от лития, углерода и кислорода здесь появился сигнал от более тяжелой примеси. Вероятнее всего, это чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга поверхности меди при имплантации протонов <sup>1</sup>) и поднятые с поверхности медной подложки конвекцией жидкого лития. В данном случае содержание меди в литии оценивается величиной (100 ± 50)  $\cdot$  10<sup>15</sup> ат/см<sup>2</sup>. Хотя такое содержание уменьшает выход нейтронов на 0,8%, но оно не вышло на насыщение. Дальнейшее облучение мишени пучком протонов с такой мощностью будет приводить к накоплению меди внутри лития и снижать выход нейтронов, делая мишень непригодной к эксплуатации.

Таким образом, методом спектроскопии ионного рассеяния установлено следующее. При термическом напылении лития в вакууме на медную подложку формируемый слой лития покрывается тонким слоем оксида лития толщиной от 10 до 50 нм и тонким слоем углерода

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup> См. главу «Исследование радиационного блистеринга».



Рис. 5.24. Спектр обратно отраженных протонов для слоя чистого лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 — сигнал обратно отраженных протонов от чистой мишени, 2 — сигнал обратно отраженных протонов от мишени после облучения пучком протонов с мощностью 3,4 кВт/см<sup>2</sup>, 3 – моделирование, построенное в программе SIMNRA

толщиной от 0,5 до 2 нм. Образовавшиеся при напылении лития слои оксида лития и углерода защищают его от взаимодействия с азотом или воздухом. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см<sup>2</sup> слои оксида лития и углерода увеличиваются в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности в выше 3 кВт/см<sup>2</sup> слой лития становится жидким, и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

#### 5.9. Заключение

В результате проведения научных исследований изготовлена тонкая литиевая мишень, обеспечивающая длительную стабильную генерацию нейтронов без деградации выхода.

Детальное описание проведенных исследований и полученные результаты изложены в диссертационных работах [84, 111–114] и в научных статьях [50, 52, 97, 115–129]. Для защиты прав на интеллектуальную собственность получены патенты [130–135].

### Глава б

# СИСТЕМА ФОРМИРОВАНИЯ ПУЧКА НЕЙТРОНОВ

### Е.А. Берендеев, Т.В. Сычева, С.Ю. Таскаев

Для лечения больных методикой БНЗТ требуются интенсивные потоки нейтронов эпитепловых энергий, точнее — нейтронов с энергиями от 1 до 30 кэВ [3]. Наилучшей реакцией для этой цели является  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ , характеризующаяся большим выходом нейтронов с наиболее мягким энергетическим спектром. Для замедления нейтронов применяют систему формирования пучка (СФП), включающую в себя замедлитель, отражатель, поглотитель и в ряде случаев фильтр. В течение последних лет, когда стала очевидной возможность изготовления литиевой мишени, СФП для реакции  $^{7}$ Li $(p, n)^{7}$ Be с 2,3–2,8 МэВ протонным пучком оптимизирована целым рядом исследовательских групп [136-151]. В качестве фантома, в котором вычисляют распределение доз, применяют модифицированный фантом головы Снайдера [152]: три вложенных друг в друга эллипсоида с разными составами элементов, максимально приближенными к составам кожи, кости и мозга. В расчетах обычно используют значения относительной биологической эффективности (ОБЭ) из работы [153]: для тканей мозга ОБЭ фотонов равна 1,0, нейтронов — 3,2, составная биологическая эффективность (СБЭ) — 1,35. Для опухоли ОБЭ полагается такой же, в то время как СБЭ — 3,8.

При расчетах доз принимают во внимание следующие процессы. Вопервых, процесс поглощения нейтронов бором, в результате которого выделяется энергия 2,79 МэВ: в 6,1% случаев энергия распределяется только между ядром лития и  $\alpha$ -частицей, в 93,9% случаев ядро лития вылетает в возбужденном состоянии и испускает  $\gamma$ -квант с энергией 478 кэВ. Во-вторых, захват нейтронов ядрами водорода, приводящий к образованию дейтерия и к испусканию  $\gamma$ -кванта с энергией 2,2 МэВ. В-третьих, появление протонов отдачи как от взаимодействия нейтронов (преимущественно быстрых) с ядрами вещества (преимущественно с водородом), так и от поглощения нейтронов ядрами азота с выделением энергии 580 кэВ. Достаточно часто учитывается поток  $\gamma$ -квантов от мишени и системы формирования пучка. Практически всегда пренебрегают процессом поглощения нейтронов хлором ввиду малости его сечения.

Считается, что замедлитель следует делать из материала с наибольшей концентрацией фтора, поскольку только фтор имеет заметное сечение неупругого рассеяния нейтронов в области энергий ниже 1 МэВ, что обеспечивает их быстрое замедление до энергий порядка 200 кэВ (рис. 6.1). Водородосодержащий замедлитель может эффективно уменьшать энергию нейтронов, но формируемый спектр нейтронов слишком смешен в область тепловых энергий и непригоден для терапии глубоко расположенных опухолей. В качестве отражателя используют свинец или графит. Поглотителем может быть полиэтилен с добавкой бора или лития. Такие СФП при протонном пучке (2,5 МэВ, 10 мА) обеспечивают мощность дозы на уровне 1 Гр экв./мин, глубину терапии (расстояние от поверхности до точки, где мощность дозы в опухоли превосходит максимальную мощность дозы в здоровой ткани) до 10 см, терапевтическое отношение (отношение максимальных значений мощности доз в опухоли и в здоровых клетках) — до 4. Это приемлемо для проведения бор-нейтронозахватной терапии.



Рис. 6.1. Зависимость сечения упругого (1) и неупругого (2) рассеяния нейтронов на фторе от энергии нейтронов (база данных ENDF/B-VII.1)

Замедлитель должен не только обеспечивать замедление нейтронов до требуемых энергий, но и осуществлять это на минимальной толщине с тем, чтобы обеспечить масимальную плотность потока нейтронов. В табл. 6.1 приведены данные о плотности фторидов и концентрации ядер фтора в них. Видно, что концентрация фтора во фторидах магния, алюминия и лития максимальна и практически одинакова. Концентрация фтора во фториде кальция и фторопласте заметно меньше, поэтому эти материалы не стоит использовать в замедлителе. Из оставшихся фторидов фторид лития рассматривают только

Материал	Плотность, г·см <sup>-3</sup>	Концентрация ядер фтора, 10 <sup>22</sup> см <sup>-3</sup>
Фторид магния, MgF <sub>2</sub>	3,177	6,14
$\Phi$ торид алюминия, AlF $_3$	2,88	6,19
Фторид лития, LiF	2,639	6,13
$\Phi$ торид кальция, CaF $_2$	3,18	4,90
Фторопласт, C <sub>2</sub> F <sub>4</sub>	2,2	5,29

Таблица 6.1. Плотность фторидов и фтора в них

в качестве тонкого фильтра на выходе СФП для поглощения тепловых нейтронов в результате реакции  ${}^{6}\text{Li}(n,\alpha){}^{3}\text{H}$  (сечение поглощение теплового нейтрона 940 б).

Рассмотрим в деталях процесс упругого рассеяния нейтронов на магнии и алюминии. Поскольку массовые числа ядер магния и алюминия близки, то близки и значения средних логарифмических потерь энергии  $\xi$ ; они равны 0,08 для магния и 0,072 для алюминия. Скорость замедления нейтронов на этих ядрах во фторидах пропорциональна плотности ядер n, сечению рассеяния  $\sigma$  и величине средней логарифмической потери энергии  $\xi$  — она приведена на рис. 6.2. Видно, что практически во всем диапазоне энергий, за исключением областей в районе 25 и 150 кэВ, замедление нейтронов на магнии эффективнее, чем на алюминии. Привлекательность алюминия состоит в том, что для нейтронов с энергией ниже 20 кэВ он становится практически прозрачным. Следовательно, оптимальным замедлителем, как подтвердили расчеты,



Рис. 6.2. Зависимость скорости замедления нейтронов на магнии (1) и алюминии (2) от энергии нейтронов

является комбинация фторидов: ближе к мишени помещают фторид магния толщиной 12 см, а затем фторид алюминия толщиной 8 см.

Поскольку генерируемые вперед нейтроны имеют значительно бо́льшую энергию, чем те, которые вылетают назад, для получения пучка нейтронов, наиболее близкого к монохроматическому, следует в передней полусфере применять графитовый отражатель, где отражение нейтронов будет сопровождаться их замедлением ( $\xi = 0,158$ ), а в задней — свинцовый, в котором отражение нейтронов будет происходить практически без потери энергии ( $\xi = 0,01$ ).

Методом численного моделирования проведена оптимизация по энергии протонов и установлено, что оптимальна энергия ~2,3 МэВ, т.е. энергия, близкая к максимуму сечения реакции. Увеличение энергии протонов с 2,3 до 2,5 МэВ приводит к увеличению плотности потока нейтронов в 1,75 раза (преимущественно за счет более энергетичных нейтронов (рис. 6.3)) и, как следствие, к практически такому же увеличению мощности поглощенной дозы в опухоли. Однако из-за появления заметной компоненты быстрых нейтронов (особенно в области 250 кэВ-1 МэВ) мощность поглощенной дозы в здоровых клетках на поверхности увеличивается в 2,56 раза, из-за чего терапевтическое отношение уменьшается с 5,4 до 3,7. Для того чтобы понизить влияние быстрых нейтронов, необходимо увеличить толщину замедлителя. При увеличении толщины с 21 до 26 см влияние быстрых нейтронов уменьшается до такой степени, что достигается примерно то же терапевтическое отношение, 5, но и мощность дозы уменьшается в 1,6 раза. Как видно из рис. 6.3, спектры нейтронов становятся подобными, и нет никакой пользы в увеличении энергии протонов. Более



Рис. 6.3. Энергетический спектр формируемого потока нейтронов: 1 — при энергии протонного пучка 2,3 МэВ и толщине замедлителя 21 см, 2 — при энергии 2,5 МэВ и толщине 21 см, 3 — при энергии 2,5 МэВ и толщине 26 см

того, при энергии протонов 2,5 МэВ в формируемом спектре нейтронов присутствует заметный поток нейтронов с энергиями более 500 кэВ, поскольку эффективность их торможения недостаточна. Так, в табл. 6.2 приведены результаты расчета величины потери энергии нейтрона при неупругом рассеянии на фторе. Видно, что если при начальной энергии в диапазоне 200–400 кэВ нейтрон при неупругом рассеянии теряет 50 % энергии, то при энергии более 500 кэВ — 30 %.

Таблица 6.2. Величина потери энергии нейтрона при неупругом рассеянии на фторе

Начальная энергия нейтрона, кэВ	200	300	400	500	600	700	800	900	1000
Потеря энергии нейтрона, кэВ	123	153	210	205	225	243	225	260	261

Таким образом, с точки зрения получения наилучшего по качеству терапевтического пучка нейтронов следует использовать протонный пучок с энергией 2,3 МэВ или близкой к этому значению. Использование протонного пучка с большей энергией может быть оправдано только для опухолей с глубиной залегания более 7 см. В этом случае следует генерировать более жесткие нейтроны для их большего проникновения внутрь, а уменьшения дозы в здоровых клетках на поверхности следует добиваться направлением пучка нейтронов с разных сторон, например, используя ортогональную систему формирования пучка нейтронов с возможностью ее поворота [154].

Система формирования пучка нейтронов с замедлителем из фторида магния изготовлена, и ею оснащен ускорительный источник нейтронов VITA в ИЯФ СО РАН (рис. 6.4). Замедлитель из комбинации фторидов не сделан из-за того, что не удалось купить кристаллы фторида алю-



Рис. 6.4. 3D-вид системы формирования пучка нейтронов (*a*), фотография одной из двух частей изготовленного отражателя с поглотителем (*б*), фотография замедлителя в процессе заполенения кристаллами фторида магния (*в*)

миния. Эта система обеспечивает получение пучка нейтронов, удовлетворяющего требованиям Международного агентства по атомной энергии [155], в частности: плотность потока эпитепловых нейтронов — 10<sup>9</sup> нейтронов/см<sup>2</sup>с при 10 мА тока пучка протонов энергией 2,3 МэВ.



Рис. 6.5. Зависимость глубинного распределения: *a*) мощности борной дозы (1 — расчетная, 2 — измеренная); б) мощности дозы  $\gamma$ -излучения (1 — расчетная, 4 — измеренная), расчетной мощности азотной дозы (2), расчетной мощности дозы быстрых нейтронов (3); *в*) терапевтического коэффициента

На рис. 6.5 представлены результаты расчета и измерения зависимости мощности компонент доз, рассматриваемых в БНЗТ, от глубины в фантоме с использованием системы формирования пучка нейтронов с замедлителем из фторида магния. Энергия пучка протонов равна 2,2 МэВ, ток — 1 мА. Фантом представляет собой куб со стороной 15 см, размещенный на расстоянии 5 см от замедлителя. В расчетах фантом заполнен тканеэквивалентным содержимым, в измерениях фантом заполнен водой. Измерения борной дозы и дозы  $\gamma$ -излучения выполнены разработанным малогабаритным детектором нейтронов с парой литиевых полистирольных сцинтилляторов, один из которых обогащен бором <sup>1</sup>). Концентрация бора полагается равной 40 ppm. Также на рис. 6.5 представлено глубинное распеределение так называемого *терапевтического коэффициента* ТК — отношения «полезной» дозы (борной дозы) к «вредной» дозе (сумме доз  $\gamma$ -излучения, быстрых нейтронов и азотной).

Видно, что формируемый пучок эпитепловых нейтронов достаточно эффективно проникает вглубь, обеспечивая максимум борной дозы на глубине 2 см и в 1/e раз меньшую на глубине 6,6 см. Если фантом вплотную разместить к замедлителю, то борная доза увеличивается в 1,5 раза, но терапевтический коэффициент уменьшается на 8%. Поскольку расчеты показывают, что увеличение энергии протонов с 2,2 до 2,3 МэВ приводит к увеличению как борной дозы, так и терапевтического коэффициента, то планируется это проверить экспериментально после замены на новые электроды ускорителя, поврежденные работой на предельно высоких параметрах.

На установке также используют замедлитель из оргстекла, обеспечивающий приемлемое качество пучка нейтронов при облучении клеточных культур и лабораторных животных, при тестировании препаратов адресной доставки бора и при лечении домашних животных со спонтанными опухолями.

На рис. 6.6 представлены результаты расчета и измерения зависимости мощности компонент доз от глубины в фантоме, размещенном вплотную к замедлителю из оргстекла толщиной 72 мм. В данном случае энергия пучка протонов равна 2,1 МэВ, ток — 1 мА.

Поскольку спектр нейтронов из-за водородосодержащего замедлителя смещен в область тепловых энергий, максимум борной дозы реализуется на поверхности, и нейтроны приникают внуть фантома на меньшую глубину — мощность борной дозы падает в e раз на глубине 3,4 см. Также видно, что терапевтический коэффициент такого пучка нейтронов в 1,5 раза меньше. Однако такой пучок обеспечивает в 2,7 раза большую мощность дозы (при энергии протонов 2,1 МэВ) и в 4,4 раза (при энергии 2,2 МэВ) по сравнению с замедлителем из фторида магния, если фантом также разместить вплотную к замедлителю.

Для улучшения качества пучка нейтронов с использованием замедлителя из оргстекла предложено сделать бо́льшую толщину замедлителя в направлении вперед (это позволит уменьшить дозу быстрых нейтронов) и внутрь оргстекла вкрапить висмут (это позволит уменьшить вклад дозы  $\gamma$ -излучения). Такое усовершенствование позволит

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) Малогабаритный детектор нейтронов подробно описан в главе 7 «Дозиметрия».



Рис. 6.6. Зависимость глубинного распределения: а) мощности борной дозы (1 -расчетная, 2 -измеренная); б) мощности дозы  $\gamma$ -излучения (1 расчетная, 4 — измеренная), расчетной мощности азотной дозы (2), расчетной мощности дозы быстрых нейтронов (3); в) терапевтического коэффициента

за счет небольшого уменьшения мощности борной дозы улучшить на треть терапевтический коэффициент — до 6.

Подробно результаты исследований изложены в диссертации [156] и в научных статьях [154, 157-159]. Для защиты прав на интеллектуальную собственность получены патенты [160, 161].

# Глава 7

# **ДОЗИМЕТРИЯ**

## Д.А. Касатов, В.В. Поросев, Ю.С. Таскаева, С.Ю. Таскаев

В БНЗТ, в отличие от других методов лучевой терапии, принято выделять четыре компоненты дозы с разными коэффициентами относительной или составной биологической эффективности: і) борная доза, обусловленная продуктами ядерной реакции  ${}^{10}B(n, \alpha)^7 Li - \alpha$ -частицей и атомным ядром лития с высокими коэффициентами линейной передачи энергии, ii) азотная доза от поглощения нейтронов атомными ядрами азота, приводящего к ядерной реакции с испусканием протона и атомного ядра углерод-14, iii) доза быстрых нейтронов, обусловленная преимущественно упругим рассеянием нейтронов преимущественно на атомных ядрах водорода и iv) доза  $\gamma$ -излучения. Доза *у*-излучения предполагает: испускание фотонов с энергией 478 кэВ из литиевого слоя мишени в результате неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития; испускание фотонов с энергией 478 кэВ из радиоактивного изотопа бериллий-7, образующегося в результате реакции генерации нейтронов  ${}^{7}Li(p, n){}^{7}Be;$  испускание фотонов с энергией 2.2 МэВ как продукта реакции захвата нейтрона атомным ядром водорода, присутствующим в теле пациента и в воде, охлаждающей нейтроногенерирующую мишень; испускание фотонов, генерируемых из конструкционных материалов системы формирования пучка нейтронов при прохождении через них нейтронов.

В единственной книге про нейтрон-захватную терапию [3], изданной в 2012 г., говорится, что «первые две компоненты доз не могут быть измерены в принципе, они могут быть только вычислены». Доза быстрых нейтронов также не может быть измерена, поскольку терапевтический пучок нейтронов — это пучок эпитепловых нейтронов, а не быстрых. Для нейтронов этого диапазона энергий нет средств регистрации. Единственная доза, для которой имеются средства измерения — это доза  $\gamma$ -излучения. Получается, что 10 лет тому назад считали, что три из четырех компонент доз неизмеримы. Некоторые исследователи, проводящие в том числе и клинические испытания методики, продолжают считать так и в настоящее время, а для оценки результатов лечения используют только расчетные данные, получаемые методом Монте-Карло. Проблема еще в том, что данные о коэффициентах относительной или составной биологической эффективности скудны и различаются. Как следствие, на 19-м Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии (Гранада, Испания, 2021) профессор Сара Гонзалез в пленарном докладе указала на фактическое отсутствие способа определения дозы ионизирующего излучения и модели, позволяющих предсказать клинический ответ.

Вместе с тем за последнее время достигнут существенный прогресс в разработке средств и методов дозиметрии — нами впервые в мире реализованы средства и способы измерения всех четырех компонент доз, рассматриваемых в БНЗТ. Они описаны в следующих двух разделах.

Помимо этих средств и методов, рассматриваемых авторами как наиболее перспективные, разработаны следующие средства.

Способ измерения борной дозы. Препарат адресной доставки бора маркируют золотом. При проведении БНЗТ нейтроны не только поглощаются атомными ядрами бора, приводя к выделению борной дозы, но и активируют атомные ядра золота, которые с периодом полураспада 2,7 дней испускают фотоны с энергией 411 кэВ. После проведения БНЗТ с помощью  $\gamma$ -спектрометра измеряют пространственное распределение интенсивности излучения фотонов с энергией 411 кэВ и, с учетом известного соотношения концентрации бор/золото, восстанавливают пространственное распределение поглощенной дозы. Пока получаемая концентрация золота недостаточна для практической реализации метода.

Активационный датчик потока эпитепловых нейтронов, представляющий собой цилиндр из оргстекла или полиэтилена с галлием в центре. При его помещении в поток нейтронов галлий активируется нейтронами, причем его чувствительность к нейтронам эпитеплового диапазона энергий имеет вид плато, а чувствительность к быстрым или тепловым нейтронам на порядок ниже [162]. Для практического применения датчика необходимо уточнить величину сечения реакции  $^{71}$ Ga ( $n, \gamma$ )<sup>72</sup>Ga ниже 100 эB, поскольку оно в базах данных ядерных реакций ENDF-VII и JENDL-4.0 отличается в 1,3 раза.

Способ измерения борной дозы. Сама реакция  ${}^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  дает прямой способ измерения борной дозы, поскольку один из продуктов этой ядерной реакции, ядро лития, в 93,9% случаев излучает фотон с энергией 478 кэВ. Регистрация таких фотонов дает прямую информацию о количестве ядерных реакций, т.е. о борной дозе. Конечно, этот метод мгновенной  $\gamma$ -спектроскопии хорошо известен [163], но не реализован для практического использования при проведении терапии. Сложность реализации в том, что спектрометр  $\gamma$ -излучения должен стоять в потоке нейтронов, иметь хорошее энергетическое разрешение. При этом из литиевой мишени в результате неупругого рассеяния протонов на атомных ядрах лития испускаются фотоны с такой же энергией. Если использовать  $\gamma$ -спектрометр, относительно стойкий в потоке нейтронов, то энергетическое разрешение не позволяет отделить линию 478 кэВ от более мощной линии 511 кэВ. НРGe  $\gamma$ -спектрометр разделяет эти линии, но он не стоек к нейтронам. Другими словами, попытки реализовать этот метод предпринимались, но не увенчались успехом. Именно по этой причине значительные усилия предпринимаются для измерения концентрации бора (в книге по нейтрон-захватной терапии [3] подробно описаны 8 непрямых методик) с тем, чтобы методом численного моделирования переноса нейтронов восстанавливать величину борной дозы. Нами предполагается реализовать этот прямой метод измерения дозы, и на то имеются следующие основания.

Во-первых, коллективом исследователей получен положительный опыт работы с HPGe  $\gamma$ -спектрометром в потоке нейтронов, когда измеряли сечение реакции <sup>7</sup>Li $(p, p'\gamma)$ <sup>7</sup>Li<sup>1</sup>). Спектрометр размещают в соседнем бункере и измеряют интенсивность излучения с мишени через отверстие, просверленное в бетонной стене толщиной 1,5 м. Похоже, такое кардинальное решение с размещением спектрометра позволит решить проблему. Конечно, необходимо существенно ограничить проникновение нейтронов через отверстие в стене (коллиматор), поскольку они не только угрожают работоспособности спектрометра, но и дают засветку на линии 478 кэВ из-за поглощения бором, содержащимся как примесь в бетоне. Перед коллиматором планируется разместить рассеиватель нейтронов, на входе в коллиматор — кадмиевую фольгу для поглощения тепловых нейтронов, за выходом из коллиматора рассеиватель нейтронов с поглотителем из блоков литиевого полиэтилена. Измерительный детектор  $\gamma$ -спектрометра обязательно следует закрыть кадмиевой фольгой, а сам  $\gamma$ -спектрометр помещать в свинцовую защиту. Закрытие детектора кадмиевой фольгой может дать дополнительную различимую линию 559 кэВ фотонов из-за реакции  $^{113}$ Cd $(n,\gamma)^{114}$ Cd, используемую для контроля интенсивности потока нейтронов.

Во-вторых, проведены предварительные исследования на модели с известным содержанием бора. Так, пробирку объемом 50 мл с бором различной концентрации помещают в пучок нейтронов и HPGe  $\gamma$ -спектрометром измеряют спектр  $\gamma$ -квантов. В данном эксперименте литиевую мишень с замедлителем из оргстекла размещают в положении  $\Gamma$ ,

<sup>1)</sup> См. главу «Получение фундаментальных знаний».

а  $\gamma$ -спектрометр — в бункере 2 (см. рис. 3.1). Пробирку и  $\gamma$ -спектрометр размещают вдоль оси отверстия в стене, просверленного на расстоянии 30 см от оси установки. Полученный результат представлен на рис. 7.1. Видно, что линия фотонов энергией 478 кэВ, уширенная эффектом Доплера, надежно измеряется, и содержание бора определяется начиная с 20 ррт. Доплеровское уширение линии обусловлено тем, что 478 кэВ фотон испускается из атомного ядра лития, продукта ядерной реакции  ${}^{10}$ В( $n, \alpha$ )<sup>7</sup>Li, в процессе разлета продуктов реакции. Отметим, что фотонная линия энергией 511 кэВ, преимущественно обусловленная поглощением нейтронов водородом, отделена от фотонной линии 478 кэВ и может использоваться для контроля потока нейтронов.



Рис. 7.1. Энергетический спектр фотонов при разной концентрации бора в пробирке

И наконец, нами 27 июня 2023 г. впервые реализован этот прямой метод измерения дозы при терапии домашнего животного — кошки с аденокарциномой в носовой полости. В данном случае литиевую мишень с замедлителем 72 мм из оргстекла размещают в положении А и  $\gamma$ -спектрометром из бункера 2 через просверленное в стене отверстие (см. рис. 3.1) регистрируют  $\gamma$ -излучение из головы кошки, размещенной вплотную к замедлителю снизу. На рис. 7.2 приведен характерный спектр регистрируемого излучения. Видно, что линия фотонов с энергией 478 кэВ уширена и достоверно измеряется. Такая хорошая регистрация фотонов реакции  ${}^{10}$ В $(n, \alpha)$ <sup>7</sup>Li обеспечена практически полным подавлением монохроматических фотонов с энергией 478 кэВ из литиевой мишени в реакции  ${}^{7}$ Li $(p, p' \gamma)$ <sup>7</sup>Li за счет экранирования литиевой мишени свинцовыми кирпичами и существенным подавлением потока



Рис. 7.2. Характерный спектр, измеряемый ү-спектрометром

нейтронов за счет размещения рассеивателей из оргстекла и кадмиевой фольги.

Облучение проведено в течение 2 ч при энергии протонов 2,05 МэВ и токе 2,2 мА с двумя прерываниями. Первое прерывание на 4 мин было необходимо для перезапуска турбомолекулярного насоса, второе на 22 мин — для переукладывания животного. За время облучения сделано 11 измерений; основные параметры приведены в табл. 7.1.

Время	Время	Общее	Живое	Флюенс	Количество
начала	окончания	время,	время,	протонов,	событий
измерения	измерения	МС	МС	мΑ·ч	в линии 478 кэВ
13:23:16	13:37:32	853172	744888	0,4358	20 480
13:37:39	13:49:44	722972	617 071	0,4358	19042
13:49:49	13:55:20	328798	282 182	0,1943	8056
13:59:26	14:06:06	397 291	339434	0,2393	9854
14:06:13	14:19:22	786516	670 431	0,4688	18933
14:19:30	14:29:53	620492	526008	0,3867	15323
14:51:31	15:04:32	778765	687242	0,4346	11887
15:04:38	15:17:03	743 329	651 004	0,4481	12238
15:17:12	15:29:02	708 684	622024	0,4234	10876
15:29:09	15:41:20	729 001	624 069	0,4343	10926
15:41:27	15:53:34	724 477	601 199	0,4358	9719

Таблица 7.1. Параметры измерений  $\gamma$ -спектрометром

Результаты измерений позволяют восстановить временную динамику мощности борной дозы; она представлена на рис. 7.3 вместе с динамикой тока пучка протонов. Если вначале голова животного была уложена так, что опухоль в носовой полости находилась в прямой



Рис. 7.3. Временная динамика мощности борной дозы D (1) и тока пучка протонов I (2)

видимости  $\gamma$ -спектрометра, то после переукладывания животного она оказалась заслоненной головой. Уменьшение регистрируемого сигнала в 1,4 раза вызвано ослаблением интенсивности фотонов при прохождении головы животного. Сделав коррекцию, получим график плавного снижения мощности дозы с характерным временем 6,6 ч.

Оценим поглощенную дозу реакции  ${}^{10}B(n,\alpha)^7$ Li. Всего в линии фотонов с энергией 478 кэВ зарегистрировано 147 тыс. событий, как следует из табл. 7.1. Учитывая то, что после переукладывания животного часть опухоли оказалась вне области наблюдения, и то, что регистрация спектрометром осуществлялась в течение 86 % времени облучения (доля живого времени к общему времени; см. табл. 7.1), получим, что за время облучения из опухоли в детектор  $\gamma$ -спектрометра должно было прилететь 197 тыс. фотонов. Полагая излучение фотонов изотропным и абсолютную чувствительность детектора <sup>1</sup>), размещенного на расстоянии 6471 мм от области облучения, равную 1,31 ×  $imes 10^{-6}$ , получим, что за время облучения из опухоли было испущено  $1.5 \cdot 10^{11}$  фотонов как продуктов реакции  ${}^{10}B(n, \alpha)^7$ Li. Так как реакция  ${}^{10}B(n, \alpha)^7Li$  в 93,9% случаев идет с испусканием фотона, а в 6,1 % — без испускания, то полное количество реакций  ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ равно 1,6 · 10<sup>11</sup>. Поскольку в клетке опухоли в результате ядерной реакции выделяется 2,34 МэВ, то такое количество реакций приводит к выделению энергии, равной 60 мДж. По данным компьютерной томографии, объем опухоли животного оценивается в 8 см<sup>3</sup>. Сделав предположение, что бор накоплен только в опухоли, получим значение

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup> См. главу 9, раздел «Измерение выхода нейтронов из литиевой мишени».

поглощенной борной дозы, равное 7,5 Гр или 28,5 Гр экв., полагая значение составной биологической эффективности 3,8. Конечно, эти исследования требуют продолжения, но результат уже проведенного исследования вселяет уверенность в применимости этого метода для оценки поглощенной дозы в опухоли и в здоровых тканях.

Для абсолютного измерения всех четырех компонент доз в БНЗТ найдено решение, которое требует проверки экспериментальной реализации.

Результаты исследований опубликованы в научных журналах [164–169], а на новые идеи получены патенты [170–172].

#### 7.1. Малогабаритный детектор нейтронов

Для измерения пространственного распределения борной дозы и дозы  $\gamma$ -излучения разработан малогабаритный детектор нейтронов с парой литьевых полистирольных сцинтилляторов, один из которых обогащен бором.

Чувствительный элемент детектора представляет собой цилиндр диаметром 1 мм и длиной 1 мм, изготовленный из пластикового сцинтиллятора на основе полистирола. Он помещен внутрь цилиндра из тефлона с толщиной стенки 1 мм. Верхняя сторона сцинтиллятора окрашена белой краской. Сцинтиллятор приклеен к оптическому волокну эпоксидной смолой, а все компоненты детектора помещены внутрь черного пластикового корпуса. Три детектора: один с обогащенным бором сцинтиллятором СЦ-331 (производства ИФВЭ г. Протвино [173]), один без бора СЦ-301 и третий вообще без сцинтиллятора, — объединены в один датчик. Сцинтилляционный свет от датчиков поступает по оптическим волокнам к считывающей электронике и регистрируется кремниевыми фотоумножителями (SiPMs) MPPC S13360-3050CS (Hatamatsu). Считывающая электроника основана на специализированной микросхеме EASIROC [174], и число событий с амплитудой, превышающей пороговое значение, накапливается в соответствующих каналах регистрации. Для снижения вклада собственного шума микропиксельных лавинных фотодиодов до уровня нескольких герц температура SiPMs поддерживается около 0 °С. Разница в отсчетах двух детекторов — с бором и без бора — позволяет оценить вклад нейтронной компоненты, а разница в отсчетах двух детекторов — без бора и без сцинтиллятора — позволяет исключить влияние сигнала, формируемого в оптическом волокне, и получить сигнал, пропорциональный дозе облучения в данной точке объема.

На рис. 7.4 представлены глубинные распределения мощности борной дозы и дозы  $\gamma$ -излучения в водном фантоме, измеренные малогабаритным детектором нейтронов, а также расчетные распределения



Рис. 7.4. Глубинное распределение борной дозы (квадраты) и дозы  $\gamma$ -излучения (точки) в водном фонтоме  $33 \times 33 \times 31,5$  см, измеренное малогабаритным детектором нейтронов. Также прдставлены расчетные компоненты доз: 1 — борная доза, 2 — доза быстрых нейтронов, 3 — доза  $\gamma$ -излучения, 4 — азотная доза

борной дозы, дозы  $\gamma$ -излучения, азотной дозы и дозы быстрых нейтронов. Видно хорошее согласие измеренных значений с расчетными.

Разработанный малогабаритный детектор нейтронов стал рутинным инструментом, используемым для верификации формируемого пучка нейтронов и для его контроля при облучении клеточных культур, лабораторных животных, а также при лечении домашних животных со спонтанными опухолями. Предполагается изготовить подобный детектор нейтронов и оснастить им ускорительный источник нейтронов VITA в НМИЦ онкологии им. Н.Н. Блохина в Москве.

#### 7.2. Клеточный дозиметр

Для измерения суммы дозы быстрых нейтронов и азотной дозы предложен новый метод, получивший название «клеточный дозиметр». Клеточные культуры облучают двумя разными излучениями (только фотонным и фотонным с нейтронным) в течение одинакового времени и добиваются одинаковой выживаемости клеточных культур, размещаемых в одном и том же положении по отношению к литиевой мишени. Поскольку выживаемость клеточных культур одинаковая и время облучения одинаковое, одинаков и биологический эффект двух разных ионизирующих излучений, и полученные эквивалентные дозы. В первом случае чистого фотонного излучения эквивалентную дозу измеряют дозиметром  $\gamma$ -излучения. Во втором случае смешанного излучения, фотонного и нейтронного, дозиметром  $\gamma$ -излучения измеряют только часть эквивалентной дозы, обусловленную фотонным излучением. Оставшуюся часть эквивалентной дозы, а именно, сумму азотной дозы и дозы быстрых нейтронов, определяют как разницу измеренных доз  $\gamma$ -излучения при фотонном излучении и смешанном. Возможность реализации предложенного способа связана с тем, что при энергии протонов ниже 1,882 МэВ из литиевой мишени исходит только фотонное излучение, вызванное неупругим рассеянием протонов на атомных ядрах лития, а при энергии протонов выше 1,882 МэВ к фотонному излучению добавляется нейтронное в реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be. Эффекта одинаковой выживаемости клеточных культур за одинаковое время облучения добиваются понижением тока пучка протонов в режиме смешанного излучения по сравнению с режимом чистого фотонного излучения.

Возможность практической реализации метода подтверждена следующим экспериментом. Клеточные культуры линии мультиформной глиобластомы человека U251 размещают под литиевой мишенью и в течение 1,5 ч облучают  $\gamma$ -излучением, производимым в реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, p'\gamma){}^{7}\text{Li}$  при энергии протонов  $1,800 \pm 0.002$  МэВ и токе  $2,17 \pm 0,03$  мА. Дозу, поглощенную клеточными культурами, измеряют дозиметром у-излучения ДБГ-С11Д (ООО «Доза». Россия): она составляет 5,21 Гр экв. Выживаемость клеточных культур, определенная клоногенным тестом, составляет  $34 \pm 4\%$ . Затем энергию протонов увеличивают до 2,050 ± 0,002 МэВ (энергии выше порога реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ ) и к  $\gamma$ -излучению добавляют нейтронное. Варьируя ток пучка протонов, облучают те же клеточные культуры, размещаемые в том же месте, в течение того же времени, измеряя  $\gamma$ -дозиметром дозу  $\gamma$ -излучения, а после обучения определяя выживаемость клеточных культур. При токе протонов  $1,40 \pm 0,05$  мА достигают такой же выживаемости клеточных культур — 34 %. В данном случае доза, измеренная  $\gamma$ -дозиметром, составляет 3,98 Гр экв. Выживаемость клеточных культур одинакова, а значит, разница между измеренными дозами  $\gamma$ -излучения 5,21–3,98 = 1,24 Гр экв. есть сумма азотной дозы и дозы быстрых нейтронов, что в данном случае составляет 31% от дозы  $\gamma$ -излучения.

#### Глава 8

# ПРИЛОЖЕНИЯ УСКОРИТЕЛЬНОГО ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ VITA

Ускорительный источник нейтронов VITA преимущественно используют для развития методики бор-нейтронозахватной терапии. В предыдущих главах описаны собственно источник нейтронов, включающий в себя ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, литиевую мишень и систему формирования пучка нейтронов, и разработанные средства и методы дозиметрии для БНЗТ. В последующих главах описаны результаты измерения выхода нейтронов и сечений ядерных реакций, исследования радиационного блистеринга поверхности металла при имплантации протонов и его влияния на выход нейтронов, внедрения ускорительного источника нейтронов VITA в клиническую практику и результаты исследований, открывающих эру литий-нейтронозахватной терапии, обеспечивающей 100%-ное выделение энергии ядерной реакции в клетках опухоли. В данной главе представим результаты исследований, связанные с развитием методики БНЗТ и не представленные в других главах, а также результаты применения источника нейтронов для других приложений.

Установлено, что облучение нейтронами опухолевых клеток глиомы человека U251 и глиобластомы человека T98G, предварительно инкубированных в среде с бором, ведет к значительному подавлению их жизнеспособности; облучение мышей с привитой опухолью приводит к их излечению [97, 175–183]. Позитивный эффект достигнут и при облучении крупных домашних животных со спонтанными опухолями [184, 185].

Ускорительный источник нейтронов активно используют для тестирования новых препаратов адресной доставки бора [186–195]. Патент на способ получения композиций для БНЗТ [196] признан Роспатентом лучшим российским изобретением XXI века [197]. На данное изобретение получен патент Китая [198] и ожидается получение патентов США, Японии и Европейского союза. Методом активационного анализа измерена концентрация опасных примесей в образцах керамики, разработанных для Международного термоядерного реактора ИТЭР (Кадараш, Франция) [199–201].

В ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией получен пучок дейтронов, а на литиевой мишени осуществлена генерация мощного потока быстрых нейтронов в реакции <sup>7</sup>Li(d,n) [202]. Статья с результатами проведенных исследований [202] победила в конкурсе Research Highlights и в числе 60 лучших статей мира опубликована на сайте nature.com с аннотацией в научно-популярном изложении [203].

На установке измерена зависимость прозрачности оптического волокна трех типов от флюенса быстрых нейтронов для Центра ядерных исследований Саклэ (Франция). Облучение образцов до флюенса 3 · 10<sup>14</sup> нейтронов/см<sup>2</sup> проведено генерацией быстрых нейтронов в течение месяца в среднем по 8 ч в день при энергии дейтронов 1,5 МэВ и токе 1 мА. Установлено, что прозрачность оптического волокна уменьшается на 50 %, как только волокно облучается быстрыми нейтронами, и не возвращается к прежнему уровню после окончания облучения (рис. 8.1). Измеренная деградация прозрачности оптических волокон варьируется от 20 % до 35 % при набранном флюенсе быстрых нейтронов 10<sup>14</sup> нейтронов/см<sup>2</sup>. Такое детальное изучение зависимости прозрачности оптического волокна от флюенса быстрых нейтронов проведено впервые, и полученные результаты уникальны и важны для науки и практики, в том числе для лазерной калибровки калориметра детектора CMS при планируемой работе Большого адронного коллайдера ЦЕРН в режиме высокой светимости.



Рис. 8.1. Изменение прозрачности оптоволокна в процессе облучения. Резкое падение и восстановление прозрачности при включении и выключении потока нейтронов. Показаны результаты для трех образцов оптоволокна, расположенных на разных расстояниях от мишени

В рамках проведенного эксперимента с генерацией быстрых нейтронов помимо оптоволокна облучены еще полупроводниковые ФЭУ и dc-dc конвертеры для детектора Атлас Большого адронного коллайдера ЦЕРН, алмазный детектор нейтронов и пластины из карбида бора для Международного термоядерного реактора ИТЭР, неодимовые магниты для мощного линака Института теоретической и экспериментальной физики (Москва) и газовые сенсоры на основе фталоцианинов титанила для Новосибирского государственного университета [204].

Также на установке i) проводят радиационное тестирование и модификацию перспективных материалов, ii) получают пучок холодных нейтронов для нейтрон-захватной терапии и нейтронографии, iii) разрабатывают *in situ* метод стерилизации эндопротезов, iv) разрабатывают компактный источник быстрых нейтронов, в ускорителе которого используют только верхную часть проходного изолятора с размещенным внутри высоковольтным источником питания — генератором Кокрофта–Уолтона.

## Глава 9

# ПОЛУЧЕНИЕ ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ ЗНАНИЙ

## М.И. Бикчурина, Д.А. Касатов, Е.О. Соколова, С.Ю. Таскаев

При проведении исследований, знакомясь с литературными данными, обнаруживали, что никто не измерял выход нейтронов из литиевой мишени, разрабатываемой для терапии пациентов, что данные о выходе 478 кэВ фотонов из литиевой мишени скудны и противоречивы, также противоречивы данные и о ряде сечений ядерных реакций. С целью получить достоверные данные нами проведены измерения выхода нейтронов и фотонов из литиевой мишени и сечений ядерных реакций  $^{7}$ Li ( $p, p' \gamma$ )<sup>7</sup>Li и  $^{7}$ Li ( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He, используя уникальные возможности установки.

Результаты исследований опубликованы в научных статьях [205–208] и внесены в международные базы данных ядерных реакций IBANDL и Exfor.

В настоящее время на установке проводят измерение сечения ядерной реакции <sup>11</sup>В( $p, \alpha$ ) $\alpha \alpha$ , перспективной для безнейтронной термоядерной энергетики, и сечений реакций при взаимодействии дейтронов с литием: <sup>6</sup>Li( $d, p_0$ )<sup>7</sup>Li, <sup>6</sup>Li( $d, p_1$ )<sup>7</sup>Li\*, <sup>7</sup>Li( $d, \alpha$ )<sup>5</sup>He, <sup>6</sup>Li( $d, \alpha$ ) $\alpha$  и <sup>7</sup>Li(d, n) $\alpha \alpha$ .

#### 9.1. Измерение выхода нейтронов из литиевой мишени

Продуктами реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Ве являются не только нейтрон, но и радиоактивное атомное ядро бериллий-7, которое в результате электронного захвата превращается обратно в литий-7 с периодом полураспада 53,22 сут. В 10,3 % случаев распад сопровождается испусканием фотона с энергией 478 кэВ. Если не допустить распространение бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер <sup>7</sup>Ве, которое равно количеству сгенерированных нейтронов.

При проведении исследований использовано 13 мишеней, размещаемых на установке в положении А или В (см. рис. 3.1). Сначала мишень облучают пучком протонов, обычно в течение 1 ч при токе 1 мA, а на следующий день измеряют активацию мишени HPGe  $\gamma$ -спектрометром. Для этого мишенный узел разбирают, вынимают из него литиевую мишень, помещают ее в прозрачный пакет, размещают на расстоянии 1854 мм от входного окна спектрометра и измеряют ее активность. Также измеряют активность мишенного узла, чтобы определить количество бериллия, перенесенного с мишени.

Калибровка по энергии и чувствительности детектора HPGe  $\gamma$ -спектрометра осуществлена девятью источниками фотонного излучения: источником  $\gamma$ -излучения с радионуклидом цезий-137 типа ИГИ-Ц-3-1 (ПО «Маяк», Озерск, Челябинская обл.), источником  $\gamma$ -излучения GBa3.11 на основе радионуклида барий-133 (АО «Ритверц», Санкт-Петербург) и семью эталонными радионуклидными источниками фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ (АО «Ритверц», Санкт-Петербург): <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co, <sup>133</sup>Ba, <sup>54</sup>Mn, <sup>152</sup>Eu, <sup>207</sup>Bi, <sup>22</sup>Na.

Для проведения калибровки HPGe  $\gamma$ -спектрометра источник фотонного излучения закрепляют на пластине из оргстекла, установленной на подвижном управляемом 2D-столе, придвигают соосно вплотную ко входному окну детектора (детектор и источники имеют форму цилиндров) и проводят измерения (рис. 9.1). Далее измерения повторяют, отодвигая источник от детектора с шагом 8 мм (вплоть до расстояния 112 мм).



Рис. 9.1. Схема проведения калибровки:  $1 - \text{HPGe } \gamma$ -спектрометр, 2 -эталонный радионуклидный источник фотонного излучения, 3 -подвижный управляемый 2D-стол с пластиной для закрепления источника фотонного излучения

Измерения проводят для всех семи источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ. В итоге чувствительность детектора по энергии определяют в 23 линиях  $\gamma$ -излучения.

Калибровка по энергии показала, что между каналом измерения и энергией фотонов имеется однозначная линейная зависимость.

При измерении энергетической зависимости чувствительности детектора  $\varepsilon$  от расстояния между спектрометром и источником излучения x не обеспечивается очевидное постоянство функции  $\varepsilon x^2(x)$ . После детального исследования выяснено, что измеряемая чувствительность зависит от мертвого времени — чем больше мертвое время, тем меньше чувствительность при прочих равных условиях. Также пришлось ввести расстояние от поверхности входного окна до германиевого кристалла, которое получилось по проведенным измерениям равным  $x_0 = 33,3$  мм.



Рис. 9.2. Зависимость функции  $\varepsilon x^2$  от энергии фотонов E: кружки — эталонные радионуклидные источники фотонного излучения из набора ОСГИРТ, источники  $\gamma$ -излучения с радионуклидом — барий-133 и цезий-137

Окончательный результат измерения функции  $\varepsilon x^2(x)$  для 23 линий  $\gamma$ -излучения представлен на рис. 9.2. Точность значений  $\varepsilon x^2(x)$ , учитывающая паспортное значение доверительной границы погрешности определения активности, точность измерений и стандартное отклонение измеренных значений, составляет от 3,2 до 5% за двумя исключениями (7,5% и 9% при энергиях 867 кэВ и 1770 кэВ соответственно). Также на рис. 9.2 приведены значения  $\varepsilon x^2(x)$ , измеренные с применением двух мощных источников  $\gamma$ -излучения с радионуклидом барий-133 и цезий-137, размещенных на расстоянии  $x_i = 1854$  мм. Напомним, что доверительные границы суммарной погрешности определения активности этих источников равны 20 и 10% соответственно; они приведены на графике.

Абсолютная чувствительность детектора  $\varepsilon x^2$  для линии 478 кэВ составляет  $55,5 \pm 2$  мм<sup>2</sup>. Так как германиевый кристалл имеет конечный поперечный размер, ранее сделанное предположение о том, что эффективность регистрации обратно пропорциональна квадрату расстояния от источника до кристалла детектора, некорректно при измерении вплотную к входному окну детектора. Для того чтобы провести

достоверные измерения при размещении источника излучения на расстоянии  $x_i \leq 56$  мм, необходим источник фотонного излучения с активностью, на порядок меньшей характерной активности эталонных радионуклидных источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ, т. е. порядка  $10^3$  Бк. Это позволит при измерении вплотную к детектору обеспечить мертвое время, приемлемое для достоверных измерений, а при измерении на расстоянии 56 мм обеспечить достаточную интенсивность излучения. Для проведения таких измерений специально изготовлены три радионуклидных источника фотонного излучения: один — <sup>197</sup> Au фольга, активированная до требуемой величины потоком нейтронов, два других — <sup>7</sup> Be, получения пучком протонов, приведшего к образованию <sup>7</sup> Be в результате реакции <sup>7</sup> Li(p, n)<sup>7</sup> Be.

В итоге значение абсолютной чувствительности детектора при измерении активации литиевой мишени, размещаемой на расстоянии  $x_i = 1854$  мм, определено для линии 478 кэВ равным  $1,56 \pm 0,07 \cdot 10^{-5}$ . Таким образом, использование двух мощных источников  $\gamma$ -излучения, семи эталонных радионуклидных источников фотонного излучения, учет геометрического размера детектора и учет влияния загрузки детектора на достоверность регистрации позволяют определить значение абсолютной чувствительности НРGe  $\gamma$ -спектрометра по линии 478 кэВ с точностью 4 %.

Всего осуществлено 15 сеансов генерации нейтронов; использовано 13 литиевых мишеней. При изготовлении всех 13 мишеней использовали только новую медную подложку и всегда напыляли новый слой лития. Основные данные о сеансах облучения представлены в табл. 9.1.

Поскольку продуктами реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be являются не только нейтрон, но и радиоактивное атомное ядро бериллий-7, измерение количества ядер <sup>7</sup>Be позволяет однозначно определить количество сгенерированных нейтронов. Радиоактивное атомное ядро <sup>7</sup>Be в результате электронного захвата превращается обратно в ядро литий-7 с периодом полураспада 53,22 сут. В 10,3 % случаев распад сопровождается испусканием фотона с энергией 478 кэВ. Если не допустить распространение бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер <sup>7</sup>Be, которое равно количеству сгенерированных нейтронов, что было сделано. Результаты измерения количества атомных ядер <sup>7</sup>Be представлены в табл. 9.2.

На примере мишени №4 покажем, как получен результат. Перед проведением измерения мишенный узел снимают с установки, разбирают, из него вынимают собственно литиевую мишень, которую помещают в прозрачный пластиковый пакет и размещают по оси спектрометра так, чтобы поверхность литиевого слоя была направлена в сторону спектрометра, а расстояние между ней и входным окном детектора Таблица 9.1. Данные о сеансах облучения: столбец 1 — порядковый номер мишени N; 2 — дата генерации нейтронов; 3 — время начала генерации; 4 время окончания генерации; 5 — используемый вид лития: природный или обогащенный изотопом литий-7; 6 — позиция размещения мишени (см. рис. 3.1), A или B; 7 — измеренная энергия протонов E; 8 — ток пучка протонов I; 9 — примерный размер пучка протонов на поверхности литиевой мишени d; 10 — набранный флюенс протонов Ф

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
№ ми- шени	Дата сеанса	Время начала	Время окон- чания	Литий	Пози- ция	Е, кэВ	<i>I</i> , мкА	<i>d</i> , см	Ф, Кл
1	18.01.2021 20.01.2021	13:56 12:05	14:55 13:01	<sup>nat</sup> Li <sup>nat</sup> Li	B B	$\begin{array}{c} 2006\pm2\\ 2006\pm1 \end{array}$	$\begin{array}{c} 1033\pm16\\ 1070\pm30 \end{array}$	1,7 1,7	7,200 7,200
2	21.01.2021 22.01.2021	12:37 13:08	13:39 14:05	<sup>nat</sup> Li <sup>nat</sup> Li	B B	$\begin{array}{c} 2006\pm2\\ 2006\pm2 \end{array}$	$\begin{array}{c}1056\pm30\\1050\pm23\end{array}$	1,7 1,7	7,200 7,200
3	25.01.2021	12:45	13:41	<sup>nat</sup> Li	В	$2006\pm2$	$1060\pm20$	1,7	3,600
4	09.03.2021	14:56	15:56	<sup>nat</sup> Li	Α	$2000\pm4$	$1006\pm27$	4	3,530
5	10.03.2021	15:17	16:16	<sup>nat</sup> Li	A	$2054\pm7$	$1018\pm34$	4	3,600
6	11.03.2021	15:17	15:13	<sup>nat</sup> Li	A	$2099\pm3$	$1027\pm60$	4	3,600
7	15.03.2021	14:03	15:03	<sup>7</sup> Li	A	$2104\pm5$	$1017\pm40$	4	3,600
8	16.03.2021	14:23	14:44	<sup>7</sup> Li	В	$2101\pm2$	$1024\pm11$	1,7	1,000
9	19.03.2021	14:14	15:18	<sup>nat</sup> Li	A	$2104\pm5$	$2021\pm90$	4	7,200
10	23.03.2021	16:14	17:03	<sup>nat</sup> Li	A	$2198\pm4$	$1295\pm140$	4	3,600
11	25.03.2021	14:24	15:32	<sup>7</sup> Li	A	$2208\pm5$	$1003\pm48$	4	3,600
12	29.03.2021	15:09	16:00	<sup>nat</sup> Li	A	$2210\pm6$	$1238\pm80$	3	3,600
13	31.03.2021	14:43	15:46	<sup>7</sup> Li	A	$2213\pm7$	$1010\pm30$	3	3,600

было равно 1854 мм. 10 марта 2021 г. в 14:56 был дан старт программному обеспечению спектрометра измерить энергетический спектр фотонного излучения. Измерение продолжалось 7 мин. Скорость счета линии 478 кэВ составила величину 63,13 с<sup>-1</sup>, точность измерения равна 0,6%, мертвое время — 1,4%. С учетом того, что абсолютная чувствительность спектрометра по линии 478 кэВ при размещении источника излучения на расстоянии 1854 мм равна  $(1,56 \pm 0,07) \cdot 10^{-5}$ , разделив скорость счета на чувствительность, получим интенсивность излучения  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ: 63,13/1,56  $\cdot$  10<sup>-5</sup> = 4,07 × × 10<sup>6</sup> с<sup>-1</sup>. Так как распад атомного ядра бериллия сопровождается испусканием  $\gamma$ -кванта с энергией 478 кэВ только в 10,3% случаев, разделив полученную интенсивность излучения  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ только в 20,3% случаев,

1	2	3	4	5
Номер мишени	Дата измерения	Время начала измерения	Скорость счета, 1/с	Количество образовавшихся ядер <sup>7</sup> Ве, шт.
1	28.01.2021	15:18	124,1	$5{,}69\cdot10^{14}$
2	28.01.2021	14:30	127,84	$5,70\cdot 10^{14}$
3	28.01.2021	14:58	69,52	$2,98\cdot 10^{14}$
4	10.03.2021	14:56	63,13	$2,\!65\cdot10^{14}$
5	11.03.2021	11:37	96,48	$4,\!02\cdot10^{14}$
6	12.03.2021	12:12	128,83	$5,37\cdot 10^{14}$
7	16.03.2021	16:25	130,16	$5,\!44\cdot10^{14}$
8	18.03.2021	16:06	44,69	$1,\!89\cdot10^{14}$
9	22.03.2021	16:49	259,86	$11,2\cdot 10^{14}$
10	24.03.2021	10:43	217,89	$9,07\cdot 10^{14}$
11	26.03.2021	10:32	250,64	$10,4 \cdot 10^{14}$
12	30.03.2021	10:31	220,5	$9,19\cdot 10^{14}$
13	01.04.2021	10:19	265,29	$11,1 \cdot 10^{14}$

Таблица 9.2. Данные по измерению мишени

478 кэВ на 0,103, получим значение активности мишени  $A = 4.07 \times$  $\times 10^{6}/0,103 = 3,93 \cdot 10^{7}$  Бк. Зная активность источника излучения, определим количество радиоактивных ядер N из следующего соотношения:  $N = \frac{At_{1/2}}{\ln 2}$  (где  $t_S = 53,22$  суток = 4,6  $\cdot$  10<sup>6</sup> с,  $\ln 2 = 0,693$ ). Следовательно,  $N = \frac{3,93 \cdot 10^7 \cdot 4,60 \cdot 10^6}{0.602} = 2,606 \cdot 10^{14}$ . Таким образом, 0.693 на момент измерения в литиевой мишени содержалось 2,606 · 10<sup>14</sup> атомных ядер бериллий-7. Поскольку измерения проведены после окончания генерации нейтронов не сразу, а позднее (конкретно для мишени № 4 — спустя 25 ч), то часть атомных ядер бериллия распалась. Согласно закону радиоактивного распада число нераспавшихся атомов в момент времени t связано с начальным (в момент t=0) числом атомов соотношением  $\frac{N(t)}{N_0} = \exp\left(-\frac{0.693 t}{t_{1/2}}\right)$ . При  $t = 9 \cdot 10^4$  с (25 ч)  $N(t) = 0.9865 N_0$ . Следовательно, к моменту окончания генерации нейтронов в литиевой мишени содержалось атомных ядер бериллий-7 на 1,35 % больше, чем в момент измерения, а именно 2,64 · 10<sup>14</sup>. Так как сама генерация нейтронов продолжалась 1 ч, то и в момент генерации часть ядер бериллий-7 распалась. Предполагая постоянство тока,

получим, что к концу генерации распалось 0,027 % образовавшихся ядер бериллий-7. Учитывая эту небольшую поправку, получим полное число ядер, образовавшихся в литиевой мишени № 4, равное 2,64 · 10<sup>14</sup>. Значит, в сеанс облучения 9 марта 2021 г. произведено 2,64 · 10<sup>14</sup> нейтронов.

Погрешность измерения количества произведенных нейтронов, если положить период полураспада и вероятность испускания фотона с энергией 478 кэВ точными табличными значениями, определяется абсолютной чувствительностью детектора и точностью измерения интенсивности линии излучения; она составляет 5 %.

Обратим внимание на то, что представленная в табл. 9.1 энергия протонов  $E = eU_{\rm H^-} + 2eU_{\rm BB}$ , где e — заряд электрона,  $eU_{\rm H^-}$  — энергия инжектируемых в ускоритель отрицательных ионов водорода, обычно 22 кэВ,  $U_{\rm BB}$  — потенциал высоковольтного источника высокого напряжения. Потенциал измеряют омическим делителем напряжения, установленным внутри бака высокого давления высоковольтного источника питания.

Поскольку реакция  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$  пороговая (порог реакции 1882 кэВ), то выход нейтронов сильно зависит от энергии протонов. Так, при уменьшении энергии протонов с 2 МэВ на 1% выход нейтронов уменьшается на 18%, а с 2,2 МэВ — на 11%.

Измерение потенциала осуществляют с частотой 1 Гц и используют в программе управления установкой для поддержания потенциала высоковольтного электрода ускорителя на заданном уровне. Ранее при эксплуатации ускорителя замечено, что потенциал высоковольтного источника питания и, как следствие, энергия протонов плавно уменьшаются в течение рабочего дня. Возможно, это связано с непропорциональным изменением сопротивлений плеч омического делителя при его нагреве. Так, при изучении влияния радиационного блистеринга на выход нейтронов установлено, что в течение 5 ч непрерывной работы ускорителя при токе 0,5 мА энергия протонов уменьшается на 0,65 %.

Калибровку омического делителя напряжения проводят по пороговой реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be. Блоком детектирования БДМН-100-07 (ООО «Доза», Россия) измеряют зависимость мощности дозы нейтронного излучения от энергии протонов в диапазоне от 1,910 до 2,000 МэВ. В этом диапазоне энергий зависимость выхода нейтронов от энергии линейная; достоверность линейной аппроксимации значений, рассчитанных с шагом 0,01 МэВ,  $R^2 = 1$ . Заметим, что эта прямая линейной аппроксимации данных пересекает ось абсцисс не при значении порога реакции в 1,882 МэВ, а при несколько большем значении — 1,885 МэВ.

В данных исследованиях использовали калибровку, проведенную ранее. Поскольку предварительные оценки измеренного выхода

нейтронов не согласовывались с расчетным, то калибровка омического делителя напряжения была повторена после проведения исследований и установлено, что измеряемая энергия протонов, представленная в табл. 9.1, на 30 ± 10 кэВ выше истинной в области 2 МэВ.

В области 2,2 МэВ калибровка энергии протонов дополнительно проведена по реакции  ${}^{9}\text{Be}(p,n){}^{9}\text{B}$  (порог реакции 2,057 МэВ). Для этого бериллиевый диск диаметром 32 мм, толщиной 9,7 мм был плотно притянут к медной подложке мишени через индий-галлиевый сплав и облучен пучком протонов в положении *A*. Детектором нейтронов с литий-содержащим сцинтиллятором GS20 (The SaintGobain Crystals, США), установленными перед мишенью, измерена зависимость регистрируемого сигнала от энергии протонов. Результаты измерения и зависимость выхода нейтронов от энергии, посчитанная программой PINO, показаны на рис.9.3. Здесь при представлении экспери-



Рис. 9.3. Зависимость выхода нейтронов Y от энергии протонов E в реакции  ${}^{9}\text{Be}(p,n){}^{9}\text{B}$ : кружки — измеренные, сплошная линия — рассчитанные программой PINO [209]

ментальных результатов по оси абсцисс отложена не энергия E, задаваемая программой управления установкой, а энергия, полученная умножением энергии E на коэффициент k, подобранный таким образом, чтобы экспериментальные данные в наилучшей степени вписывались в расчетные. В данном случае  $k = 0.983 \pm 0.001$ . Это означает, что если программой управления установки выставлено удерживать энергию протонов 2200 кэВ, в действительности энергия протонов равна  $2163 \pm 2$  кэВ. Если программой выставлено удерживать энергию протонов 2000 кэВ, в действительности энергия протонов равна  $1966 \pm 2$  кэВ. Таким образом, нами осуществлена калибровка омического делителя напряжения; в дальнейших расчетах будет сделана поправка на корректную энергию. Здесь сразу следует заметить, что данная корректировка применима только для режима, когда установка проработала некоторое время и источник высокого напряжения нагрелся. В начальный момент времени это не так. Для того чтобы добиться ясности в этом процессе, осуществлен следующий эксперимент.

В сеансах облучения мишеней № 12 и № 13 (табл. 9.1) реализовали режим с постоянной энергией протонов, не выставляемой, а реальной. Для этого использовали поворотный магнит как энергоанализатор. Если реальная энергия протонов уменьшается, то пучок протонов на поверхности литиевой мишени смещается. Увеличением энергии, выставляемой в системе управления установкой, возвращаем пучок протонов в исходное положение. Положение пучка протонов в центре мишени контролировали следующими диагностическими средствами: i) видеокамерой, регистрирующей люминесценцию лития под действием протонов, ii) пятью термопарами, размещенными внутри медного диска литиевой мишени: одна в центре, другие четыре на расстоянии 18 мм от центра, равномерно разнесенные по азимуту, и iii) по показаниям двух малогабаритных детекторов нейтронов с полистирольным литьевым сцинтиллятором, обогащенным бором, приклеенных к вакуумной камере мишенного узла вблизи литиевой мишени. Для улучшения чувствительности диагностических средств к смещению пучка развертка пучка протонов, установленная в вертикальном тракте транспортировки пучка, не включалась. В этом случае пучок протонов на поверхности мишени имел характерный размер 3 см.

На рис. 9.4 представлена временная зависимость энергии протонов, сигнала детектора нейтронов и температуры в центре литиевой мишени во время сеанса облучения мишени № 12. Видно, что выход нейтронов и температура в центре мишени практически постоянны, в то время как выставляемую энергию пучка пришлось практически линейно поднимать в течение первых 15 мин облучения на 13 кэВ. После дальнейшей коррекции энергии для поддержания пучка протонов в центре мишени не требовалось. Выставляемая энергия протонов в режиме плато была  $2213 \pm 2$  кэВ. Умножив ее на коэффициент  $k = 0.983 \pm 0.001$ , получим реальную энергию протонов во время облучения мишени № 12; она равна  $2175 \pm 3$  кэВ. Сразу обратим внимание на то, что и в самом начале облучения реальная энергия протонов была равна 2175 кэВ, поскольку пучок протонов попадал в центр мишени. Значит, в самом начале облучения коэффициент k = 2175/2200 = 0.9886.

Аналогичная процедура определения корректной энергии протонов применена и в сеансе облучения мишени № 13.


Рис. 9.4. Временна́я зависимость энергии протонов *E*, сигнала детектора нейтронов *Y* и температуры в центре литиевой мишени *T* во время сеанса облучения мишени № 12

Для других сеансов облучения, когда поворотным магнитом как энергоанализатором не поддерживали постоянство энергии протонов, необходимо сделать еще одно предположение, а именно: коэффициент *k* зависит от времени. В первые 15 мин он линейно падает с 0,9886 (оценка приведена выше) до 0,983 и далее в течение 45 мин остается постоянным. Таким образом, средневзвешенный коэффициент *k* сеансов облучения мишеней №№ 1–11 будет равен 0,98375±0,002. Его будем использовать при коррекции энергии протонов в сеансах облучения этих мишеней.

Поскольку энергия протонов определена, зная флюенс протонов, определим выход нейтронов, используя программу PINO. При

вычислении выхода нейтронов учтем три поправки, приводящие к небольшому уменьшению выхода нейтронов.

Во-первых, учтем процентное содержание лития-7. Мы полагаем его содержание в природном литии 92,5 %. В обогащенном литии его атомная доля составляла 99,988 %.

Во-вторых, в используемом природном литии присутствуют примеси в концентрации 0,044 %. Средневзвешенное значение атомного номера примесей, в соответствии с паспортом продукта, равно 15. Это значение в 5 раз превосходит атомный номер лития, следовательно, торможение протона, определяемое взаимодействием с электронами, в 5 раз эффективнее на примесях, чем на литии. Значит, примеси в концентрации 0,044 % уменьшают выход нейтронов на 0,22 %. В литии, обогащенном изотопом литий-7, концентрация примесей равна 0,012 %, значит, их присутствие уменьшает выход нейтронов на 0,06 %.

В-третьих, учтем вторичную эмиссию электронов при измерении тока протонов. Его измеряют по падению напряжения на калиброванном сопротивлении, подключенном к мишенному узлу, электрически изолированному от установки. Хотя мишенный узел выполнен в виде глубокого цилиндра Фарадея, эмиссия электронов из него возможна. Для измерения эмиссии электронов шибер, как часть мишенного узла, был дополнительно изолирован и на него подавали потенциал. Получено, что подача запирающего отрицательного напряжения уменьшает ток в среднем на 1 %. Значит, измеренный флюенс протонов завышен на 1 %.

Как уже говорилось, если не допустить распространение бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер <sup>7</sup>Ве, которое равно количеству сгенерированных нейтронов. При проведении данного исследования измеряли активацию не только литиевой мишени, но и мишенного узла, из которого вынута мишень. Установлено, что часть бериллия-7 перемещена с мишени на мишенный узел, но эта часть мала — менее 1/10 000 во всех сеансах облучения. Ввиду малости перемещения радиоактивного изотопа бериллий-7 с мишени предложенный метод измерения выхода нейтронов применим.

Учтя все поправки, представим окончательный результат проведенного исследования в табл. 9.3, в которой для каждой мишени приведены значения измеренного количества атомных ядер бериллий-7, образованных в реакции  $^{7}$ Li $(p, n)^{7}$ Be, корректное значение энергии протонов, расчетное значение количества сгенерированных нейтронов и в последнем столбце — отношение измеренного количества атомных ядер бериллий-7 к расчетному количеству нейтронов. Полученный результат в наглядном виде представлен на рис. 9.5.

Таблица 9.3. Результат проведенного исследования. 1 — порядковый номер мишени; 2 — тип использованного лития (природный или обогащенный изотопом лития-7); 3 — измеренное количество ядер бериллия-7; 4 — реальная энергия протонов; 5 — расчетное количество нейтронов; 6 — отношение измеренного количества ядер бериллия-7 к расчетному количеству нейтронов, %

1	2	3	4	5	6
№	Li	№ <sub>7Ве</sub> , 10 <sup>14</sup> шт. измеренное	Е <sub>реальное</sub> , кэВ	Y <sub>n</sub> , 10 <sup>14</sup> шт. расчетное	$N_{^7\mathrm{Be}}/Y_n,$
1	<sup>nat</sup> Li	$5{,}69{\pm}0{,}28$	$1973\pm4$	$5,\!48\pm0,\!25$	$104\pm10$
2	<sup>nat</sup> Li	$5,\!70\pm0,\!29$	$1973\pm5$	$5,\!49\pm0,\!34$	$104\pm11$
3	<sup>nat</sup> Li	$2,\!98\pm0,\!15$	$1973\pm5$	$2,\!74\pm0,\!17$	$109\pm11$
4	<sup>nat</sup> Li	$2,\!64\pm\!0,\!13$	$1967\pm 6$	$2,\!50\pm0,\!19$	$106\pm13$
5	<sup>nat</sup> Li	$4,\!02\pm\!0,\!20$	$2020\pm8$	$4,\!25\pm0,\!27$	$95\pm11$
6	<sup>nat</sup> Li	$5,\!37\pm0,\!27$	$2065\pm5$	$5,\!75\pm0,\!17$	$93\pm8$
7	<sup>7</sup> Li	$5,\!44\pm\!0,\!27$	$2069\pm 6$	$6,\!37\pm0,\!22$	$85\pm9$
8	<sup>7</sup> Li	$1,\!89\pm0,\!09$	$2067\pm5$	$1,\!75\pm0,\!05$	$108\pm8$
9	<sup>nat</sup> Li	$11,2\pm0,56$	$2069\pm 6$	$11,\!76\pm0,\!42$	$95\pm9$
10	<sup>nat</sup> Li	$9,07 \pm 0,45$	$2162\pm 6$	$9,82\pm0,33$	$92\pm8$
11	<sup>7</sup> Li	$10,4\pm0,52$	$2172\pm7$	$11,\!27\pm0,\!44$	$92\pm9$
12	<sup>nat</sup> Li	$9,19\pm0,46$	$2174\pm3$	$10,\!57\pm0,\!17$	$\overline{87\pm7}$
13	<sup>7</sup> Li	$11,1\pm0,56$	$2176\pm3$	$11,\!59\pm0,\!2$	$96\pm7$

В 11 из 13 сеансов облучения измеренное значение выхода нейтронов согласуется с расчетным. В двух сеансах измеренный выход нейтронов не совпал с расчетным. Если в сеансе облучения мишени № 7 причина ясна — при облучении в литиевом слое образовались дырки, то в сеансе облучения мишени № 12 причина осталась невыясненной. Заметим, что проблема образования дыр при первом облучении мишени литий-7 оперативно решена коррекцией процедуры напыления лития, и в дальнейшем подобного явления не наблюдалось.

Видно, что измеренное количество бериллия-7 всегда немного больше расчетного, если мишень размещают в горизонтальном тракте (сеансы 1–3 и 8), и практически всегда меньше, если мишень размещают в вертикальном тракте (сеансы 4–7 и 9–13). Возможно, это связано с большим размером пучка протонов и его смещением по поверхности мишени, из-за чего часть пучка протонов могла не попадать в область напыления лития, хотя визуально по отпечатку пучка на поверхности лития это не наблюдалось.



Рис. 9.5. Результат проведенного сравнения измеренного выхода нейтронов с расчетным: сверху вниз — мишени по порядку, черные прямоугольники — интервалы расчетного количества нейтронов, серые и белые — интервалы измеренного количества нейтронов (серые — природный литий, белые — обогащенный изотопом литий-7). Справа приведены характерные значения энергии протонов

Таким образом, в результате проведенного исследования измерен выход нейтронов из литиевой мишени путем измерения активации мишени радиоактивным изотопом бериллий-7 с применением спектрометра  $\gamma$ -излучения на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия. Впервые экспериментально продемонстрировано соответствие выхода нейтронов из конкретно изготовленной мишени расчетным значениям, что критически важно для планирования терапии и оценки результатов лечения.

Высокая точность абсолютной чувствительности HPGe  $\gamma$ -спектрометра по линии 478 кэВ достигнута использованием девяти эталонных радионуклидных источников фотонного излучения, учетом геометрического размера детектора и влияния загрузки детектора на достоверность регистрации. Получение пучка протонов с постоянной энергией достигнуто использованием поворотного магнита как энергоанализатора и контролем положения пучка на поверхности литиевой мишени по регистрации люминесценции лития под действием протонов, по измерению температуры литиевой мишени термопарами, размещенными внутри медного диска мишени, и по показаниям двух малогабаритных детекторов нейтронов с полистирольным литиевым сцинтиллятором, обогащенным бором, приклеенных к вакуумной камере мишенного узла вблизи литиевой мишени.

# 9.2. Измерение сечения реакции ${}^{7}Li(p, p'\gamma){}^{7}Li$ и выхода фотонов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени

На рис. 9.6 приведены имеющиеся литературные данные о выходе  $\gamma$ -квантов в реакции <sup>7</sup>Li $(p, p'\gamma)^7$ Li из толстой литиевой мишени [210–214], на рис. 9.7 — о сечении реакции <sup>7</sup>Li $(p, p'\gamma)^7$ Li [210, 215–219]. Видно, что данные разных авторов существенно отличаются друг от друга; какие из них достоверные — это понять невозможно.



Рис. 9.6. Выход  $\gamma$ -квантов в реакции <sup>7</sup>Li $(p, p'\gamma)$ <sup>7</sup>Li: кружки — измеренный [212], квадратики — расчетный [210], ромбы — измеренный при E = 1,75 МэВ и расчетный при других значениях энергии [211], треугольники — измеренный при E = 1,67 и 1,87 МэВ и оцененный при 1,95 МэВ [214], пунктирная линия — расчетный [213]

По причине отсутствия понимания, какие результаты являются достоверными, а какие нет, была поставлена задача измерить сечение реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, p'\gamma){}^{7}\text{Li}$  и выход  $\gamma$ -квантов из толстой литиевой мишени.

Исследование проведено на ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией при энергии протонного пучка от 0,65 до 2,225 МэВ, токе 300–500 мкА, поперечном размере пучка протонов 1 см. Схема экспериментальной установки показана на рис. 9.8.

Литиевую мишень размещают в торце вакуумной камеры горизонтальной части тракта транспортировки пучка протонов. Ток пучка протонов измеряют и контролируют бесконтактным датчиком тока, положение пучка — термопарами, вставленными внутрь охлаждаемых диафрагм. Положение и размер пучка протонов на поверхности литиевой



Рис. 9.7. Сечение реакции <sup>7</sup>Li $(p, p'\gamma)$ <sup>7</sup>Li [210, 215–219]



Рис. 9.8. Схема экспериментальной установки: 1 — ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 — бесконтактный датчик тока, 3 — мишенный узел, 4 литиевая мишень, 5 — окна для наблюдения, 6 — временная бетонная стенка, 7 — спектрометр  $\gamma$ -излучения, 8 — свинцовый коллиматор, 9 — бетонная стена

мишени измеряют и контролируют видеокамерой Hikvision и восемью термопарами, вставленными в отверстия медного диска мишени, просверленные с его боковой поверхности. Мощность амбиентного эквивалента дозы  $\gamma$ -излучения контролируют дозиметром  $\gamma$ -излучения ДБГ-С11Д. Эффективный центр канала измерения дозиметра расположен на расстоянии 31,6 см от места излучения под углом 90° к направлению пучка протонов. Интенсивность  $\gamma$ -излучения измеряют двумя  $\gamma$ -спектрометром: НРGе  $\gamma$ -спектрометром и  $\gamma$ -спектрометром с NaI(TI) сцинтиллятором размером 51 × 51 мм (Азимут Фотоникс, Москва; поставщик сцинтиллятора Saint-Gobain Crystals).

Измерения проведены в трех вариантах размещения  $\gamma$ -спектрометра; на рис. 9.8 они показаны как А, Б и В. В положениях А и Б спектрометр помещают внутрь свинцового коллиматора с внешним диаметром 270 мм, длиной 500 мм, толщиной стенки 50 мм. Спектрометр вместе с коллиматором защищены от излучения ускорителя стенкой толщиной 23 см, временно выстроенной из бетонных блоков. В положении В спектрометр размещен в соседнем бункере за бетонной стеной толщиной 1,5 м. В стене специально проделано отверстие, направленное на мишень. Заметим, что размещение бетонной стенки, коллиматора и спектрометра показано на рис. 9.8 схематически; в реальности они расположены в горизонтальной плоскости.

Ниже будут последовательно представлены результаты измерений, выполненных в положениях А, Б и В. Сначала в положении А проведены измерения при энергии протонов ниже порога генерации нейтронов, затем в положении Б определена изотропность излучения, затем в положении В улучшена точность измерения и расширен диапазон энергии протонов.

**Положение А.** Чувствительная часть НРGе  $\gamma$ -спектрометра размещена на расстоянии 2,00 м под углом 110°. Типичный сигнал спектрометра показан на рис. 9.9. Виден узкий полезный сигнал в области 478 кэВ, широкий сигнал из-за тормозного излучения ускорителя, интенсивность которого увеличивается с увеличением напряжения ускорителя, и характеристическое рентгеновское излучение в области ниже



Рис. 9.9. Типичный сигнал НРGе  $\gamma$ -спектрометра: 1 - 478 кэВ фотоны, испускаемые в реакции  ${}^{7}$ Li( $p, p' \gamma$ ) ${}^{7}$ Li, 2 - тормозное излучение ускорителя, 3 - характеристическое рентгеновское излучение, испускаемое свинцом. Верхняя кривая получена при энергии протонов 1,75 МэВ, нижняя - 0,8 МэВ

90 кэВ, испускаемое свинцом. Мертвое время спектрометра не превышало  $26\,\%$  при измерении сечения реакции и  $13,4\,\%$  при измерении выхода фотонов.

Спектрометр  $\gamma$ -излучения калиброван по полной чувствительности радионуклидным источником фотонного излучения закрытого типа Cs-137 активностью 1,6 · 10 Бк (достоверность 10%) по линии излучения 661,657 кэВ. При проведении калибровки радионуклидный источник был помещен на поверхность медного диска мишени в его центре — максимально близко к месту излучения из лития. Относительная чувствительность спектрометра калибрована эталонными источниками фотонного излучения из набора ОСГИ-ТР (ЗАО «Ритверц», Россия): Na-22, Mn-54, Co-60, Ba-133, Cs-137, Eu-152 и Bi-207. Достоверность интенсивности эталонных источников излучения составляет 7%.



Рис. 9.10. Измеренный выход  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени в реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,p'\gamma){}^{7}\text{Li}$ . Для сравнения приведены данные измерений: кружки — [212], ромбики — [211], треугольники — [214] и расчета, квадратики — [210]

На рис. 9.10 представлен результат измерения выхода  $\gamma$ -квантов энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,7 до 1,85 МэВ с шагом 25 кэВ. Мишень называют толстой, поскольку толщина напыленного литиевого слоя (200 мкм) превышает длину пробега протона в литии, равного: от 31 мкм при энергии протона 0,7 МэВ до 144 мкм при 1,85 МэВ [108].

При проведении исследований стабильность энергии составляла от 0,1 до 0,2%, в среднем 0,14%. Абсолютное значение энергии откалибровано по порогу генерации нейтронов реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ ,

равному 1,882 МэВ. Время набора статистики, обычно 2–3 мин, выбирали таким, чтобы ошибка измерения скорости счета линии 478 кэВ не превышала 0,5%. Примерно такую же ошибку в измерения давала ошибка измерения заряда, перенесенного пучком протонов, при этом стабильность тока пучка протонов была на уровне 3%. В итоге ошибка измерения относительной величины выхода  $\gamma$ -квантов, приведенная на рис. 9.10, не превышала 1%. Измерение абсолютной величины выхода  $\gamma$ -квантов задается радионуклидным источником фотонного излучения закрытого типа Cs-137, достоверность интенсивности которого составляет 10%, и эталонными источниками фотонного излучения из набора ОСГИ-ТР, достоверность интенсивности которых — 7%. Суммируя, можно утверждать, что абсолютный выход  $\gamma$ -квантов из толстой литиевой мишени измерен с точностью, лучшей 15%.

Затем на медную подложку мишени был напылен тонкий слой лития и измерен выход  $\gamma$ -квантов энергией 478 кэВ при энергии протонов от 0,7 до 1,85 МэВ с тем же шагом по энергии 25 кэВ.

Толщина литиевого слоя определена следующим образом. Известно, что скорость потери энергии протона S в литии зависит от его энергии E следующим образом [108]:

$$S = rac{S_{
m low} \cdot S_{
m high}}{S_{
m low} + S_{
m high}} \; \mathrm{sB}/(10^{15} \; \mathrm{atomos/cm}^2),$$

где  $S_{\text{low}} = 1,6E^{0,45}, \ S_{\text{high}} = \frac{725.6}{E} \ln \left(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578E\right), \ E$  берется в килоэлектронвольтах. Используя эту формулу, вычисляем величину потери энергии протона на литии кристаллической плотности. Получаем, что на толщине 1 мкм протон теряет от 15,4 кэВ при энергии 0,7 кэВ до 7,77 кэВ при 1,85 МэВ. Предположим, что толщина лития равна х. Выход ү-квантов из тонкой литиевой мишени равен  $Y_x = nx\sigma I/e$ , где n — плотность атомных ядер лития (4,59 · 10<sup>22</sup> см<sup>-3</sup>), x — толщина лития,  $\sigma$  — сечение реакции <sup>7</sup>Li $(p, p'\gamma)$ <sup>7</sup>Li, I — ток пучка протонов, е — заряд электрона. Так как измерение скорости счета линии 478 кэВ на тонкой и толстой мишенях проведено с шагом 25 кэВ, то скорость счета  $\gamma$ -квантов из толстой мишени  $Y_i$  можно определить из измеренной скорости счета на тонкой мишени Y<sub>i</sub> как  $Y_j = \sum\limits_{i=0}^j Y_i rac{25}{S_i(x)},$  где индекс i указывает на номер измерения (i=0при 0,7 МэВ, *i* = 1 при 0,725 МэВ и так далее с шагом по энергии 25 кэВ),  $S_i(x)$  — величина потери энергии протона (в кэВ) на литиевом слое толщиной х. На рис. 9.11 представлены две кривые скорости счета из толстой мишени, одна измеренная, другая восстановленная по вышеприведенной формуле при взятой толщине лития 2,1 мкм. В этом



Рис. 9.11. Зависимость скорости счета  $\gamma$ -квантов энергией 478 кэВ от энергии протонов E: кружки — измеренная из толстой литиевой мишени, линия — восстановленная из измерений из тонкой литиевой мишени толщиной 2,1 мкм

случае измеренная и восстановленная кривые совпадают наилучшим образом, значит, толщина лития равна 2,10 ± 0,03 мкм.

Поскольку толщина лития определена, измерение скорости счета  $\gamma$ -квантов энергией 478 кэВ позволяет определить сечение реакции <sup>7</sup>Li( $p, p'\gamma$ )<sup>7</sup>Li; оно представлено на рис. 9.12. Относительная погрешность измерений сечения, определяемая погрешностью скорости счета детектора и стабильностью тока, приведена на рис. 9.12; она не превышает 1 %. Абсолютная погрешность измерения сечения, определяемая достоверностью интенсивностей радионуклидных источников фотонного излучения, как обсуждалось выше, не превышает 15%. Хотя стабильность энергии была лучше 0,2%, торможение протона



Рис. 9.12. Сечение реакции  ${}^{7}$ Li $(p, p' \gamma)^{7}$ Li: кружки — измеренное, пунктирная линия — измерения, представленные в работе [219]

на литиевом слое конечной толщины увеличивало неопределенность в определении энергии, которая в итоге составила от 0,4 до 1,2%; она указана на рис. 9.12.

Обратим внимание на то, что измеренное нами сечение хорошо согласуется с наиболее свежими результатами, полученными Р. Матеусом и др. [219], если их данные умножить на коэффициент, равный 1/0,925, учитывающий процентное содержания изотопа литий-7 в природном литии.

**Положение Б.** Затем проведены измерения в позиции Б. Чувствительная часть HPGe  $\gamma$ -спектрометра размещена на расстоянии 2,00 м под углом 15° (см. рис. 9.8).

Цель измерения состояла в проверке изотропности излучения фотонов. В работе [218] утверждалось, что если при резонансном пике 1030 кэВ излучение изотропно, то при более высокой энергии оно не изотропно. Наибольший провал интенсивности излучения предсказывался при угле 15°. Так, при энергии 1,8 МэВ, как указано в работе [218], выход  $\gamma$ -излучения для тонкой мишени под углом 15° в лабораторной системе координат в 3,5 раза меньше, чем под углом 120°. Для толстой мишени этот провал составляет 1,47 раз.

Зависимость интенсивности излучения фотонов на угол 15° от энергии протонов измерена как из тонкой литиевой мишени, так и из толстой. На рис. 9.13 приведена измеренная зависимость интенсивности излучения под углом 15° из тонкой мишени вместе с ранее измеренной под углом 110°. Видно, что отличия от изотропии не наблюдается. Такой же результат получен при измерении интенсивности излучения



Рис. 9.13. Измеренная зависимость скорости счета фотонов с энергией 478 кэВ из тонкой литиевой мишени от энергии протонов E: кружки — излучаемых в угол  $110^\circ$ , квадраты —  $15^\circ$ 

из толстой мишени: увеличение энергии протонов с 1,4 до 1,8 МэВ увеличивает интенсивность излучения в  $2,45\pm0,03$  раза как под углом 110°, так и под углом 15°, тогда как в статье [218] предсказано увеличение интенсивности излучения в 1,94 раза под углом 15°, в 3,4 раза под углом 90° и в 3,6 раза под углом 120°.

Следовательно, излучение фотонов с энергией 478 кэВ при неупругом рассеянии протона на атомном ядре лития изотропно в исследуемом нами диапазоне энергий протонов.

Положение В. После отправки в сентябре 2020 г. в г. Сямынь (Китай) собранного и протестированного ускорительного источника нейтронов VITA коллективу исследователей предоставлен освободившийся бункер, соседний с тем, в котором размещается источник нейтронов и проводятся исследования. Эта возможность позволила повторить измерения с целью повышения их точности и достоверности, а также произвести измерения при энергии протонов выше порога генерации нейтронов. Для этого в бетонной стене толщиной 1,5 м, разделяющей соседние бункеры, просверлено отверстие, направленное на литиевую мишень. Чувствительная часть HPGe  $\gamma$ -спектрометра при энергии ниже 1,882 МэВ размещена на расстоянии 4,83 м под углом 15°. При энергии протонов выше 1,882 МэВ использовали NaI  $\gamma$ -спектрометр в том же положении и HPGe  $\gamma$ -спектрометр, отнесенный дальше на 1,6 м, а чувствительная часть спектрометра обернута кадмием. Размещение спектрометров в отдельном помещении за толстой стеной позволило значительно уменьшить фоновый сигнал и снизить мертвое время HPGe  $\gamma$ -спектрометра до значения, не превышающего 4 %. Характерные спектры измеряемых сигналов приведены на рис. 9.14.

Калибровка спектрометров по абсолютной чувствительности осуществлена с помощью радиоактивных ядер Ве-7, наработанных в ли-



Рис. 9.14. Характерный сигнал HPGe γ-спектрометра при энергии протонов 1,8 МэВ (a) и NaI γ-спектрометра при 2,1 МэВ (верхняя кривая), 1,85 МэВ (нижняя кривая) (б)

тиевой мишени в результате реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ . В результате облучения мишени из природного лития пучком протонов с энергией  $2100 \pm 2$  кэВ и флюенсом  $3,602 \pm 0,003$  Кл наработано  $7,1 \cdot 10^{14}$  ядер  ${}^{7}\text{Be}$  [49]. В результате распада ядер  ${}^{7}\text{Be}$  испускаются фотоны с энергией 478 кэВ. Полагая период полураспада ядер 53,3 сут и вероятность испускания фотона 10,3%, получаем яркость источника фотонов, равную  $(1,10 \pm 0,01) \cdot 10^{7}$  с $^{-1}$ . Такой способ калибровки привлекателен из-за того, что энергия фотонов источника в точности равна энергии регистрируемых фотонов и они испускаются из точно того же места. Заметим, что при такой калибровке детектора выход фотонов при энергии протонов 1 МэВ на 1,5% больше значения, полученного при калибровке набором радионуклидных источников в позиции А.

Для измерения выхода фотонов из толстой литиевой мишени напыляют литий толщиной 200 мкм, для измерения сечения реакции литиевый слой толщиной  $1,23 \pm 0,04$  мкм. Толщину тонкого литиевого слоя определили аналогично описанному выше. Также толщину тонкого литиевого слоя оценили, сравнивая интенсивность нейтронного излучения, измеряемую дозиметром, из толстой и тонкой литиевой мишени при энергии протонов от 1,95 до 2,1 МэВ. Если из толстой ишени интенсивность излучения растет с увеличением энергии протонов [49], то из тонкой остается практически постоянной, повторяя сечение реакции, которое в этом диапазоне энергий слабо меняется: от 280 мб при 1,95 МэВ до 316 мб при 2,1 МэВ [220]. Оцененная таким образом толщина лития получилась равной  $1,16 \pm 0,1$  мкм, что хорошо согласуется с предыдущим измерением.

Результаты измерения выхода фотонов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени с природным содержанием изотопов лития и сечения реакции <sup>7</sup>Li( $p, p'\gamma$ )<sup>7</sup>Li представлены на рис. 9.15 и в табл. 9.4, 9.5.



Рис. 9.15. Измеренная зависимость выхода фотонов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени с природным содержанием изотопов лития (*a*) и сечения реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, p'\gamma){}^{7}\text{Li}$  (*б*) от энергии протонов *E* 

<i>Е</i> , кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$Y, 10^7$ мкКл $^{-1}$	$\Delta Y$ , $10^7$ мкКл $^{-1}$
650,2	1,2	0,00058	0,00008
675,5	0,9	0,0010	0,0001
700,1	1,0	0,0020	0,0002
724,9	0,9	0,0037	0,0002
749,5	1,0	0,0059	0,0002
776,2	1,1	0,0102	0,0002
800,6	1,1	0,0158	0,0003
825,5	1,1	0,0255	0,0003
850,2	1,2	0,0386	0,0005
875,4	1,2	0,0593	0,0006
900,1	1,1	0,0919	0,0007
924,6	1,2	0,143	0,0009
949,3	1,4	0,224	0,001
974,0	1,1	0,340	0,001
1000,6	1,4	0,496	0,002
1025,3	1,4	0,661	0,011
1050,0	1,6	0,834	0,008
1075,3	1,4	1,01	0,01
1099,9	1,8	1,20	0,01
1124,5	1,4	1,38	0,01
1149,0	2,0	1,45	0,01
1174,0	1,4	1,61	0,01
1200,6	1,2	1,76	0,01
1225,3	1,3	1,92	0,01
1249,7	1,2	2,05	0,01
1275,2	1,6	2,28	0,02
1299,7	1,6	2,44	0,02
1324,5	1,4	2,59	0,02
1349,2	1,4	2,77	0,02
1374,0	1,6	2,92	0,03
1398,5	1,3	3,12	0,03
1425,2	1,4	3,35	0,03
1449,6	1,5	3,53	0,03
1474,9	1,5	3,67	0,03
1499,6	1,5	3,94	0,03
1524,1	1,7	4,22	0,03
1549,1	1,6	4,44	0,03

Таблица 9.4. Выход фотонов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени с природным содержанием лития

E, кэВ	$\Delta E$ , кэВ	Y, 10 <sup>7</sup> мкКл <sup>-1</sup>	$\Delta Y$ , 10 <sup>7</sup> мкКл <sup>-1</sup>
1575,9	1,4	4,69	0,03
1600,5	1,5	4,92	0,03
1625,1	1,5	5,12	0,03
1649,6	1,5	5,51	0,03
1674,7	1,7	5,76	0,04
1699,7	1,5	6,03	0,04
1721,2	2,0	6,46	0,05
1723,7	3,1	6,50	0,05
1745,8	2,0	6,75	0,05
1749,1	1,5	6,88	0,04
1770,4	2,0	7,09	0,05
1775,8	1,4	7,29	0,04
1794,0	4,8	7,46	0,05
1800,3	1,4	7,56	0,04
1818,6	4,1	7,85	0,05
1824,9	1,6	8,05	0,04
1843,1	3,2	8,25	0,06
1849,7	1,7	8,36	0,04
1867,7	4,9	8,62	0,06
1875,2	1,7	8,76	0,13
1891,3	5,5	9,09	0,06
1900,1	2,0	9,23	0,14
1917,8	6,0	9,47	0,07
1924,6	1,7	9,52	0,14
1942,4	4,0	9,89	0,07
1951,2	1,7	10,17	0,15
1966,0	4,1	10,28	0,07
1975,8	1,5	10,60	0,16
1990,6	4,0	10,81	0,08
2000,4	1,8	10,91	0,16
2015,2	3,2	11,21	0,08
2024,9	1,5	11,44	0,17
2039,7	3,0	11,55	0,08
2049,8	2,3	11,68	0,18
2064,3	3,3	11,91	0,08
2075,1	1,6	12,45	0,19
2100,0	1,7	12,72	0,19

Продолжение табл. 9.4

E, кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$Y, 10^7$ мк ${ m Kr}^{-1}$	$\Delta Y$ , $10^7$ мкКл $^{-1}$
2124,6	1,9	13,20	0,20
2151,3	1,8	13,78	0,21
2175,9	1,9	14,61	0,22
2200,4	1,8	14,72	0,22
2225,1	1,8	15,24	0,23

Окончание табл. 9.4

Таблица 9.5. Сечение реакции  ${}^{7}$ Li $(p, p'\gamma){}^{7}$ Li

E, кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$\sigma$ , мб	$\Delta\sigma$ , мб
640,1	9,7	0,065	0,013
665,3	10,0	0,176	0,026
690,5	9,5	0,36	0,04
715,8	9,3	0,50	0,04
740,0	9,1	0,78	0,04
766,2	9,0	1,23	0,05
792,4	8,8	1,91	0,06
816,5	8,5	2,45	0,07
842,7	8,4	3,78	0,09
867,9	8,4	5,22	0,11
892,0	8,1	7,97	0,14
917,2	8,1	12,16	0,23
941,3	8,0	17,91	0,27
967,4	9,1	27,15	0,38
993,6	7,5	35,05	0,49
1018,7	7,4	40,03	0,50
1042,8	7,3	40,75	0,48
1067,9	7,1	39,01	0,47
1093,0	7,0	36,32	0,44
1118,2	6,9	33,64	0,43
1142,3	6,8	32,08	0,40
1167,4	6,7	30,82	0,39
1194,5	6,6	30,42	0,39
1218,6	6,5	30,07	0,39
1243,6	6,4	30,27	0,38
1268,7	6,4	30,68	0,42
1293,8	6,5	30,91	0,40
1318,9	6,4	31,17	0,40

<i>Е</i> , кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$\sigma$ , мб	$\Delta \sigma$ , мб
1342,9	6,3	32,58	0,42
1368,1	6,0	33,97	0,43
1393,1	6,2	34,29	0,45
1419,2	6,1	35,59	0,48
1444,2	6,0	36,45	0,48
1469,3	6,0	37,90	0,50
1494,4	5,9	38,91	0,51
1518,5	5,9	40,60	0,53
1543,5	5,8	41,71	0,55
1570,6	5,7	43,77	0,56
1596,7	5,7	45,95	0,57
1624,7	7,3	47,67	0,63
1634,8	5,6	48,65	0,65
1646,8	5,6	49,70	0,64
1658,8	5,5	50,11	0,65
1674,9	6,0	52,27	0,70
1685,9	5,5	52,63	0,68
1696,9	5,5	53,65	0,70
1708,9	5,4	53,73	0,69
1721,0	5,4	55,31	0,70
1733,0	5,1	56,11	0,71
1746,0	5,4	58,08	0,72
1758,0	5,3	60,64	0,74
1773,1	5,3	61,48	0,78
1785,1	5,0	62,67	0,80
1790,0	5,9	63,70	0,83
1798,1	5,3	64,44	0,78
1808,7	5,9	65,61	0,85
1810,1	5,2	66,41	0,80
1822,2	5,2	66,91	0,84
1828,4	5,8	67,57	0,88
1834,2	4,9	68,37	0,86
1845,2	4,8	69,19	1,0
1847,2	5,2	69,21	0,83
1849,0	5,8	69,68	0,9
1867,7	5,7	71,77	0,9
1887,4	5,7	72,45	0,9

Продолжение табл. 9.5

Е, кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$\sigma$ , мб	$\Delta\sigma$ , мб
1908,0	5,7	72,01	0,9
1926,7	5,6	70,12	0,9
1946,3	5,6	69,91	0,9
1966,0	5,6	70,43	0,9
1986,6	5,5	71,60	0,9
2005,3	5,5	72,29	0,9
2026,0	5,5	73,94	1,0
2043,7	5,4	74,55	1,0
2066,3	5,4	75,44	1,0
2084,0	5,4	77,35	1,0
2104,6	5,3	79,44	1,0

Окончание табл. 9.5

Сравнивая эти результаты с результатами, представленными выше (Положение А), заключаем, что данные выхода фотонов полностью соответствуют друг другу, данные сечения реакции согласуются при энергии протонов ниже 1,8 МэВ и несколько выше при энергии протонов выше 1,8 МэВ, что вполне может объясняться повышенной загрузкой спектрометра при измерении в положении А. Также в этих измерениях расширен диапазон энергии протонов: нижняя граница — с 0,7 до 0,65 МэВ, верхняя — с 1,85 до 2,225 МэВ. Таким образом, с высокой точностью и достоверностью измерено сечение реакции  $^7$ Li при энергии протонов от 0,65 до 2,225 МэВ и впервые — зависимость выхода фотонов с энергией 478 кэВ от энергии протонов в этом диапазоне энергий. Достоверность полученной нами зависимости выхода фотонов от энергии протонов подтверждена результатами независимого измерения другими исследователями, опубликовавшими полученные данные в статье [221].

Полученные нами значения сечения реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, p'\gamma){}^{7}\text{Li}$  и выхода фотонов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени в табличном виде представлены в опубликованной статье [207] и внесены в базу данных IBANDL (библиотеку ядерных данных ионного-лучевого анализа Международного агентства по атомной энергии) и в базу данных Exfor (данные экспериментальных ядерных реакций) [222].

## 9.3. Измерение сечения реакции <sup>7</sup>Li $(p, \alpha)^4$ He

Реакция <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He характеризуется высоким выходом энергии, 14,347 МэВ, и является одной из термоядерных реакций, участвующих в звездном цикле синтеза тяжелых элементов во Вселенной. Эта реакция также сопровождает генерацию нейтронов в реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be, которую используют в ряде ускорительных источников нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей. Знание сечения реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He, безусловно, важно для оценки ядерных данных. Однако существующие наборы данных о поперечных сечениях в литературе, к сожалению, во многих случаях противоречивы [223–233]. На рис. 9.16 приведены данные полного и дифференциального сечения реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He.

Видно, что данные разных авторов и даже данные из разных баз данных значительно отличаются друг от друга; непонятно, какие данные следуют считать достоверными. Цель исследования состояла в измерении сечения реакции  ${}^{7}$ Li $(p, \alpha)^{4}$ He.

Для проведения исследований ток пучка протонов на мишени уменьшают до величины менее 1,5 мкА размещением на его пути охлаждаемого коллиматора, расположенного в 4 м от мишени. Коллиматор представляет собой медный прямоугольный параллелепипед толщиной 16 мм со сторонами 64 × 64 мм. В центре диафрагмы просверливают отверстие диаметром 1 мм, а с обеих сторон делается зенковка диаметром 10 мм. Внутри диафрагмы выполнены каналы диаметром 10 мм для водяного охлаждения. Охлаждающая вода поступает в диафрагму и выходит из нее по металлическим трубкам, впаянным в диафрагму. Диафрагма крепится к трехмерному подвижному входу TTX100100200YZS (UHV Design) и может перемещаться в плоскости, ортогональной направлению распространения протонного пучка.

Положение и размер пучка протонов на мишени контролируют видеокамерой Hikvision, регистрирующей люминесценцию лития под действием протонов. Ток протонного пучка, попадающего на литиевую мишень, измеряют резистивным делителем напряжения, используя мишенный узел, электрически изолированный от установки, как глубокий цилиндр Фарадея.

Для измерения сечения реакции на медную подложку мишени напыляют слой лития толщиной  $\sim 0,5$  мкм. Напыление лития на мишень осуществляют на стенде. После напыления лития мишенный узел закрывают шибером для сохранения вакуума внутри, отсоединяют от стенда напыления лития, переносят на установку и подключают к горизонтальному тракту протонного пучка.

Интенсивность и энергию  $\alpha$ -частиц в реакции <sup>7</sup>Li $(p, \alpha)^4$ Не измеряют  $\alpha$ -спектрометром с кремниевым полупроводниковым детектором ПДПА1К (ИФТП, Дубна, Россия). Площадь чувствительной поверхности детектора равна  $S = 20 \text{ мм}^2$ , энергетическое разрешение — 13 кэВ, энергетический эквивалент шума — 7 кэВ, емкость — 30 пФ, толщина входного окна — 0,08 мкм, стандартный естественный фон в диапазоне 3–8 МэВ — 0,15 имп/(см<sup>2</sup> · ч). При измерении сечения реакции



Рис. 9.16. Полное (*a*) и дифференциальное (б) сечение реакции  $^{7}$ Li $(p, \alpha)^{4}$ He

 $^{7}$ Li $(p, \alpha)^{4}$ He чувствительную часть  $\alpha$ -спектрометра располагают на расстоянии R = 516 мм от лития под углом  $168 \pm 0.5^{\circ}$  к импульсу протона.

Сечение реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He измерено следующим образом. В течение определенного времени t пучком протонов с током i облучают слой лития толщиной l и  $\alpha$ -спектрометром регистрируют  $\alpha$ -частицы, вылетающие в телесный угол  $\Omega$  под углом  $168 \pm 0.5^{\circ}$  к импульсу протонов. Дифференциальное сечение реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He рассчитывают по формуле

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{eY}{2knl\Phi\Omega_{\rm lab}},$$

где e — заряд электрона, Y — экспериментально измеренный выход  $\alpha$ -частиц (количество  $\alpha$ -частиц в пике), коэффициент 2 указывает, что продуктами данной реакции являются две  $\alpha$ -частицы, k — эффективность регистрации спектрометром  $\alpha$ -частиц, n — ядерная плотность атомных ядер <sup>7</sup>Li, l — толщина литиевого слоя,  $\Phi$  — флюенс протонов,  $\Omega_{\rm lab}$  — телесный угол.

Отношение дифференциального сечения в системе центра масс  $d\sigma_{\text{ц.м.}}/d\Omega_{\text{ц.м.}}$  к дифференциальному сечению в лабораторной системе координат  $d\sigma/d\Omega$  дается выражением [234]

$$\frac{d\sigma_{\text{IL.M.}}}{d\Omega_{\text{IL.M.}}} = \frac{|1+\beta\cos\theta|}{\left(1+\beta^2+2\beta\cos\theta\right)^{\frac{3}{2}}}\frac{d\sigma}{d\Omega},$$

где

$$\beta = \sqrt{\frac{m_p \widetilde{M}}{M_B M} \cdot \frac{M}{T_M + Q}}$$
 и  $T_M = E_p \frac{M}{(m_p + M)}$ 

 $M, \widetilde{M}$  — массы частиц после распада (в этом случае массы  $\alpha$ -частиц),  $m_p$  — масса протона,  $M_B$  — масса частиц мишени (в этом случае масса лития),  $\theta$  — угол регистрации частиц в лабораторной системе координат (в этом случае 168°), Q — энергетический выход реакции,  $E_p$  — кинетическая энергия налетающего протона.

Для удобства введем коэффициент *G*, связывающий системы координат:

$$G = \frac{|1 + \beta \cos \theta|}{\left(1 + \beta^2 + 2\beta \cos \theta\right)^{\frac{3}{2}}}.$$

Поскольку излучение изотропно в системе центра масс, определим сечение реакции  $^7\mathrm{Li}(p,\alpha)^4\mathrm{He}$  как

$$\sigma = 4\pi G \frac{d\sigma}{d\Omega}.$$

Видно, что для измерения сечения необходимо знать эффективность детектирования  $\alpha$ -спектрометра, толщину литиевого слоя, ядерную

плотность <sup>7</sup>Li в литиевом слое, телесный угол, коэффициент G и флюенс протонов.

Определим эффективность регистрации k. Альфа-спектрометр откалиброван двумя эталонными источниками излучения на основе радионуклида плутоний-239 с активностью 4.01 · 10<sup>5</sup> Бк (паспорт № 6887. маркировка 7165, 2П9-405.85, дата выпуска 12.09.1985) и 1,21 × × 10<sup>5</sup> Бк (паспорт № 6882, маркировка 7160 1П9-105.85, дата выпуска 12.09.1985). Доверительные границы суммарной погрешности результата измерения активности каждого из источников установлены в паспортах равными 19%. Для определения эффективности регистрации α-спектрометра эталонные источники излучения размещают на расстоянии 102,8 мм от поверхности детектора и измеряют их активность. Измеренные активности источников составили 4.16 · 10<sup>5</sup> Бк и  $1,22 \cdot 10^5$  Бк — на 4 и 1,5% больше паспортных; они соответствуют паспортным значениям в границах погрешности. Поскольку измеренные значения активности источников соответствуют паспортным, считаем эффективность регистрации α-частиц детектором равной 100 %, т. е. k = 1 с точностью 3%.

Калибровка спектрометра по энергии проведена образцовым спектрометрическим  $\alpha$ -источником с изотопом  $^{226}$ Ra (паспорт  $\mathbb{N}$  425/331/10692-A, 21.10.1977) активностью 3,84 · 10<sup>4</sup> Бк, характеризующимся энергиями  $\alpha$ -частиц основных переходов 4748, 5453, 5966 и 7651 кэВ. Установлено, что зависимость энергии E от номера канала N линейная и описывается выражением E [keV] = 1,3578N + + 65,321.

Определим плотность атомных ядер литий-7 в литиевом слое n. Ранее установлено, что плотность напыленного слоя лития соответствует плотности металлического лития, равной 0,54 г/см<sup>3</sup>. Взяв молярную массу лития 6,997 г/моль и плотность лития 0,54 г/см<sup>3</sup>, получим объем одного моля лития равным 13,1 см<sup>3</sup>. Разделив число Авогадро (6,022  $\cdot$  10<sup>23</sup> моль<sup>-1</sup>) на этот объем одного моля вещества, получим плотность атомных ядер лития, равную 4,596  $\cdot$  10<sup>22</sup> см<sup>-3</sup>. Содержание лития-7 в природном литии полагаем равным 92,5% (см. с. 98). Следовательно, плотность атомных ядер литий-7 в литиевом слое  $n = 4,596 \times 10^{22} \times 0,925 = 4,251 \cdot 10^{22}$  см<sup>-3</sup> с точностью 0,1%.

Определим толщину литиевого слоя *l*. Толщина лития измерена предложенным и реализованным нами *in situ* методом, подробно описанным в разделе «Метод *in situ* измерения толщины слоя лития» на с. 100 и в опубликованной статье [128].

Для изготовления толстой мишени с литиевым слоем толщиной 227 мкм использовали 640 мг лития. Литий взвешивали на весах OHAUS PX84 (США), точность измерения — 0,1 мг. Мишень облучили протонным пучком и измерили спектр фотонов HPGe  $\gamma$ -спектрометром. Спектр  $\gamma$ -излучения, измеренный в течение 611 с (живое время 600,3 с) при токе пучка протонов  $4,24 \pm 0,02$  мкА, представлен на рис. 9.17, *а*. Скорость счета линии 478 кэВ составляет 84,59 событий/с; на единицу тока — 19,95 событий/(с · мкА); всего событий в линии 50757.



Рис. 9.17. Спектр *ү*-излучения из толстого (*a*) и тонкого (*б*) слоя лития, облучаемого 1,85 МэВ протонами

Затем литиевый слой с мишени был смыт водой, и на мишень напылен тонкий слой лития толщиной примерно 0,5 мкм, для этого использовали ~ 1,5 мг лития. Мишень с тонким слоем лития установлена в то же положение, и  $\gamma$ -спектрометром измерен спектр  $\gamma$ -излучения в течение 100 мин (живое время 5926,8 с) при токе пучка протонов 10,10 ± 0,05 мкА (рис. 9.17,  $\delta$ ). Скорость счета линии 478 кэВ составляет 1,50 событий/с; на единицу тока — 0,148 событий/(с · мкА); всего событий в линии 8904.

Соотношение интенсивности излучения фотонов с энергией 478 кэВ на единицу тока из исследуемого литиевого слоя и из толстого равно  $A = 0,148/19,95 = 7,45 \cdot 10^{-3}$ . Используя формулу, приведенную в разделе на с. 100, получим толщину исследуемого литиевого слоя l (мкм) =  $45,698A^2 + 56,281A = 0,422$ . Принимая во внимание стабильность тока протонов (1%), статистическую ошибку набора данных (0,4 и 1,1%) и достоверность вписывания распределения Гаусса в линию 478 кэВ (0,5 и 2,5%), получим погрешность измерения толщины лития 3%. Таким образом, толщина лития равна  $l = 0,422 \pm 0,013$  мкм.

При измерении сечения реакции <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He чувствительную часть детектора  $\alpha$ -спектрометра размещают на расстоянии 516 мм от лития под углом 168 ± 0,5° к импульсу протонов. Характерный спектр, регистрируемый  $\alpha$ -спектрометром, представлен на рис. 9.18. Опишем его.



Рис. 9.18. Спектр заряженных частиц, зарегистрированных α-спектрометром при энергии протонов 1 МэВ: 1-3 — обратно отраженные протоны от меди (1 — одиночные события, 2 — двойные, 3 — тройные), 4 — α-частицы, 5 — одновременная регистрация α-частицы и протона. Си, Li, C, и O — обратно отраженные протоны от атомных ядер меди, лития, углерода и кислорода

Основной сигнал (1, 2 и 3 на рис. 9.18, а) — это протоны, обратно рассеянные на атомных ядрах меди, при этом 1 — одиночные события, 2 — двойные события, 3 — тройные. На этом фоне одиночных событий отчетливо выделяются небольшие пики, обусловленные рассеянием протонов на атомных ядрах лития, углерода и кислорода (Li, C и O на рис. 9.18,  $\delta$ ). Спектр обратно отраженных протонов, моделируемый SIMNRA v.7.03 [110] с указанной выше толщиной слоев лития, углерода и кислорода, хорошо согласуется с измеренным. Сигнал 4 — это  $\alpha$ -частицы, сигнал 5 — события одновременной регистрации  $\alpha$ -частицы и обратно отраженного протона.

Энергия  $\alpha$ -частиц зависит от энергии протонов; определим эту зависимость. При столкновении протона с неподвижным ядром лития образуется короткоживущее ( $\tau \sim 10^{-18}$  с) компаунд-ядро, которое приобретает импульс и, двигаясь, распадается на две  $\alpha$ -частицы. Из диаграммы столкновения определим кинетическую энергию зарегистрированной  $\alpha$ -частицы  $E_M(\theta)$  при угле  $\theta$  в лабораторной системе координат [234]:

$$E_M(\theta) = E_p \frac{Mm_p}{(M+\widetilde{M})^2} \times \left[\cos\theta + \sqrt{\frac{\widetilde{M}(M+\widetilde{M})}{Mm_p}} \left[\frac{M_B}{M_B + m_p} + \frac{Q}{E_p}\right] - \sin^2\theta\right]^2 \quad [0 \le \theta \le \pi],$$

где  $M, \widetilde{M}$  — массы частиц после распада (в данном случае массы  $\alpha$ -частиц),  $m_p$  — масса протона,  $M_B$  — масса частицы мишени (в данном случае масса лития),  $\theta$  — угол регистрации частицы в лабораторной системе координат (в данном случае 168°),  $E_p$  — кинетическая энергия налетающего протона, Q = 17,34 МэВ — энергетический выход реакции. С увеличением энергии протона энергия  $\alpha$ -частицы, излучаемая под углом 168° к импульсу протона, уменьшается. Так, если при энергии протона 1 МэВ энергия  $\alpha$ -частицы равна 7,663 МэВ, то при 2 МэВ — 7,523 МэВ.

Максимумы в измеренных распределениях  $\alpha$ -частиц по энергии получаются при энергиях, меньших расчетных на 50–70 кэВ. Такой сдвиг может быть вызван ионизационными потерями  $\alpha$ -частицы при прохождении слоя лития. В соответствии с формулой Бете–Блоха [235] ионизационные потери  $\alpha$ -частицы в литии составляют  $\approx 600 \text{ МэB/(г} \times \infty \text{ см}^2)$ , и при прохождении слоя лития толщиной 0,422 мкм  $\alpha$ -частица теряет энергию  $\approx 134$  кэВ. Поскольку  $\alpha$ -частицы генерируются во всей толщине лития, то в среднем они проходят в литии 0,211 мкм, и их средняя потеря энергии составляет 67 кэВ, что хорошо согласуется с измеренным сдвигом по энергии. Следовательно, измеренное смещение энергии  $\alpha$ -частицы обусловлено ее ионизационными потерями при прохождении сквозь слой лития.

Измерения проведены при 10 значениях энергии. В табл. 9.6 представлены данные о проведенных измерениях: энергия протонов E, флюенс протонов  $\Phi$ , полное и живое время измерения  $\alpha$ -спектрометром, измеренный выход  $\alpha$ -частиц (интеграл под пиком) Y, коэффициент G, связывающий системы координат.

Таблица 9.6. Данные параметров измерений: E — энергия протонов,  $\Phi$  — флюенс протонов, полное и живое время — общее и живое время измерений  $\alpha$ -спектрометром, Y — экспериментальный выход  $\alpha$ -частиц (интеграл под пиком), G — коэффициент связи систем координат

Е, кэВ	Ф, мКл	Полное время, с	Живое время, с	<i>Y</i> , события	G
$601\pm3$	1,72	3756	3602	1300	1,2637
$796\pm4$	3,79	3945	3613	4022	1,3115
$900\pm3$	3,19	4008	3735	3838	1,3339
$1000\pm3$	3,44	3908	3623	4536	1,3552
$1104\pm4$	4,16	3987	3652	6186	1,3759
$1300\pm4$	4,08	3916	3604	6939	1,4154
$1503\pm2$	5,17	3981	3603	10 197	1,4531
$1703\pm4$	1,55	3746	3634	3714	1,977
$1853\pm2$	0,96	873	817	2584	1,5149
$2008 \pm 15$	4,20	4363	4075	13 363	1,5404

Чтобы определить выход  $\alpha$ -частиц Y, просуммируем все события с частицами в диапазоне энергий от 6,5 МэВ до 8 МэВ. При этом вычтем значение фона в диапазоне от 3 МэВ до 8 МэВ, равное 0,15 имп/(см<sup>2</sup> · ч), в площади 20 мм<sup>2</sup>. Тогда, предполагая равномерное распределение по каналам, получим фоновый сигнал в диапазоне энергий от 6,5 МэВ до 8 МэВ, равный 0,9 имп/ч. В 9 из 10 экспериментах измерения проведены в течение одного часа; считаем, что за это время произошло одно фоновое событие, которое вычтем. В одном эксперименте измерения проведены в течение 0,24 ч; в данном случае считаем, что фоновых событий не было в течение этого времени.

Полученные данные по сечению представлены в табл. 9.7 и 9.8 и на рис. 9.19 в сравнении с данными других авторов и баз данных ядерных реакции. Высокая точность измерения достигнута реализацией нового *in situ* метода измерения толщины лития. Достоверность измерения толщины лития подтверждается согласием с результатами измерений, проведенных еще пятью независимыми методиками: i) по измерению на весах массы лития, закладываемого для напыления,



Рис. 9.19. Дифференциальное (*a*) и полное (*б*) сечение реакции  ${}^{7}Li(p, \alpha)^{4}He$ 

Е, кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$\sigma$ , мбарн/ср	$\Delta\sigma$ , мбарн/ср			
601	3	0,450	0,023			
796	4	0,630	0,029			
900	3	0,714	0,033			
1000	3	0,784	0,035			
1104	4	0,884	0,040			
1300	4	1,010	0,046			
1503	2	1,172	0,052			
1703	4	1,425	0,066			
1853	2	1,606	0,077			
2008	15	1,892	0,084			

Таблица 9.7. Дифференциальное сечение реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,\alpha)^{4}\text{He}$  при угле 168°: E — энергия протонов,  $\Delta E$  — стандартное отклонение E,  $\sigma$  — сечение,  $\Delta \sigma$  — статистическая дисперсия  $\sigma$ 

Таблица 9.8. Сечение реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, \alpha)^{4}$ Не при угле 168°: E — энергия протонов,  $\Delta E$  — стандартное отклонение E,  $\sigma$  — сечение,  $\Delta \sigma$  — статистическая дисперсия  $\sigma$ 

<i>Е</i> , кэВ	$\Delta E$ , кэВ	$\sigma$ , мбарн	$\Delta\sigma$ , мбарн
601	3	7,15	0,37
796	4	10,39	0,48
900	3	11,97	0,56
1000	3	13,35	0,60
1104	4	15,29	0,69
1300	4	17,96	0,81
1503	2	21,39	0,96
1703	4	26,82	1,25
1853	2	30,57	1,46
2008	15	36,62	1,63

іі) по измерению проводимости воды, которой был смыт литий с медной подложки мишени, ііі) по сдвигу максимума в энергетическом распределении  $\alpha$ -частиц, іv) по уширению энергетического распределения  $\alpha$ -частиц и v) по энергетическому распределению протонов, обратно отраженных на атомных ядрах лития. Видно, что полученные нами значения дифференциального сечения реакции согласуются с большей

частью данных работы [230], измеренных при угле 90°, и отличаются от остальных данных.

Установлено, что измеренное сечение ядерной реакции  ${}^{7}\text{Li}(p, \alpha)^{4}\text{He}$  в диапазоне энергий протонов от 0,6 МэВ до 2 МэВ согласуется со значениями, приведенными в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0 и примерно в 2 раза больше значений, приведенных в базах данных ядерных реакций ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019.

Полученные нами значения сечения реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,\alpha)^{4}\text{He}$  внесены в базу данных IBANDL (библиотеку ядерных данных ионного-лучевого анализа Международного агентства по атомной энергии) и в базу данных Exfor (данные экспериментальных ядерных реакций).

#### Глава 10

# ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННОГО БЛИСТЕРИНГА

Т.А. Быков, Д.А. Касатов, А.М. Кошкарев, Я.А. Колесников, Е.О. Соколова, И.М. Щудло, С.Ю. Таскаев

Литиевая мишень выполнена в виде тонкого литиевого слоя, напыленного на эффективно охлаждаемую металлическую подложку. Толщина литиевого слоя, генерирующего нейтроны, выбирается таким образом, чтобы энергия протонов на выходе из слоя была немного ниже 1,882 МэВ, порога реакции  $^{7}$ Li $(p, n)^{7}$ Be. Дальнейшее торможение протонов и их поглощение происходит в конструкционном материале, к которому предъявляются следующие требования. Во-первых, этот материал должен обладать высоким коэффициентом теплопроводности или быть достаточно тонким, чтобы температура лития не превысила температуру плавления 182 °С для предотвращения распространения образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7 вместе с парами лития. С этой точки зрения наилучший материал — медь. Во-вторых, торможение протонов в этом материале не должно приводить к заметной мощности нежелательного рентгеновского и у-излучения. С этой точки зрения, как было выяснено в результате проведенных исследований [127], наилучшими материалами являются молибден и тантал, но может использоваться и медь. И, в-третьих, считается, что этот материал должен обладать достаточной стойкостью к радиационному блистерингу. Оговоримся, что под термином «блистеринг (blistering)» в соответствии с работами [236, 237] будем понимать деформацию поверхностного слоя облучаемого металла, вызванную накоплением атомов газа на глубине торможения ионов, имплантированных во время облучения. На поверхности металла блистеринг проявляется в виде куполообразных возвышений (пузырей) и отшелушивания тонкого поверхностного слоя (чешуек).

При создании нейтроногенерирующей мишени для БНЗТ особое внимание уделяют проблеме блистеринга по нескольким причинам: блистеринг может делать мишень непригодной к эксплуатации [238, 239], может ограничивать время эксплуатации [240–244], может

создать проблемы при клиническом применении [245-247]. Для решения проблемы блистеринга, важность которой подчеркивается во всех работах, предлагают различные решения. Это использование мишени с толшиной меньше длины пробега протонов, как в проекте C-BENS с 30 МэВ протонами и бериллиевой мишенью [104]. В Бирмингеме [248], в Обнинске [249] и в Хельсинки, наоборот, делают литий толстым, чтобы в нем останавливались протоны. В большинстве же проектов между нейтроногенерирующим слоем и теплоотводящей медной подложкой размещают тонкий слой металла, наиболее стойкого к радиационному блистерингу, как правило, палладия или тантала [242, 250, 251]. Такое разнообразие решений, возможно, связано с отсутствием знаний о влиянии блистеринга на выход нейтронов, в том числе о пороге образования блистеров в металлах при имплантации протонов с энергией около 2 МэВ и при температуре металлов в районе 150 °С - ниже температуры плавления лития. Данные о пороге образования блистеров при таких параметрах актуальны не только для литиевой мишени, но и для бериллиевой, поскольку обе рассматриваемые для БНЗТ реакции генерации нейтронов,  $^{7}$ Li $(p,n)^{7}$ Be и  $^{9}$ Be $(p,n)^{9}$ B, характеризуются близкими значениями порога генерации нейтронов: 1,882 и 2,057 МэВ соответственно.

### 10.1. Исследование радиационного блистеринга поверхности меди и тантала при имплантации 2 МэВ протонов

Сначала на установке проведено изучение процесса образования блистеров при облучении протонами с энергией 2 МэВ образцов, сделанных из меди, тантала и сплавов медь-тантал. Исследования проведены с пучком протонов энергией 2 МэВ, током до 5 мА, поперечным размером порядка 1 см. Фотография части установки представлена на рис. 10.1. В диагностический бак тракта транспортировки пучка протонов на оси размещают образец, выполненный в форме диска диаметром 30 мм, толщиной 3 мм. Образец через сплав галлия-индия плотно прижимают к теплоотводящей поверхности, выполненной в виде медной пластины с близко расположенными отверстиями для протекания охлаждающей жидкости, внутрь которых вставлены стержни с резьбой для завихрения потока воды. Такая конструкция позволяет существенно улучшить теплосьем и при токе протонов порядка 0,5 мА поддерживать температуру поверхности металлических образцов, адекватную условиям эксплуатации мишени при генерации нейтронов ниже температуры плавления лития, 182 °С.



Рис. 10.1. Экспериментальная установка: 1 — ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 — компьютер, 3 — дистанционный микроскоп с ССD камерой, 4 — подсветка, 5 — окно из плавленого кварца, 6 — диагностическая вакуумная камера. Стрелкой схематически показано направление распространения 2 МэВ протонного пучка

Температуру образца с точностью 1 °С измеряют платиновым терморезистором Pt100 (ЧЭПТ-1), вставленным внутрь отверстия диаметром 1,5 мм, просверленного в образце до центра диска на глубине 1,5 мм от поверхности. Терморезисторы предварительно откалиброваны и подключены по трехпроводной схеме, учитывающей погрешность, вносимую сопротивлением проводов. Температуру поверхности образца измеряют пирометром Optris через окно из плавленого кварца и тепловизором (инфракрасной камерой) FLIR через окно из фторида бария. Калибровка пирометра и тепловизора в диапазоне от 100 до 250 °С осуществлена путем нагрева образцов горячим воздухом, подаваемым вместо воды в каналы охлаждения, и измерения температуры терморезистором, вставленным внутрь образца. Обратим внимание на то, что пирометр измеряет температуру в пятне диаметром 19 мм (с контрастностью 60:1, 90 % энергии, диапазон от 50 до 400 °C). Поскольку размер пятна превышает размер пучка протонов, то пирометр дает заниженные показания. Показания пирометра на медных образцах дополнительно занижены на ~40 °С вследствие того, что коэффициент эмиссии полированной меди  $\varepsilon < 0,1$  и откалибровать пирометр на нужное значение коэффициента технически невозможно (из-за конструкции пирометра).

Измерение тока протонного пучка, падающего на образец, осуществляют омическим делителем при подаче положительного напряжения 100 В на образец и отрицательного напряжения 300 В на супрессорное кольцо, установленное в 50 мм перед образцом. Перед диагностической камерой установлена медная охлаждаемая диафрагма с диаметром отверстия 26 мм. Измерения температуры четырьмя терморезисторами Pt100 (ЧЭПТ-1), вставленными внутрь диафрагмы и равномерно разнесенными по азимуту, позволяют контролировать распространение пучка протонов по оси установки.

Непрерывное наблюдение в реальном времени за поверхностью образца проводят ССD-камерой с дистанционным микроскопом Infinity K2 (DistaMax<sup>TM</sup>, CША), установленной под углом 42° к нормали поверхности образца, через окно из плавленого кварца. Расстояние от поверхности передней линзы микроскопа до образца равно 330 мм. Микроскоп откалиброван с помощью перекрестия из проволоки толщиной 100 мкм; разрешение составляет 260 лин/мм. Образцы через дополнительное окно из плавленого кварца подсвечивают галогенной лампой источника света LFP-10WP-R (Shibuya, Япония) мощностью 10 Вт. Рядом с ССD-камерой размещают компьютер, используемый для сбора данных с камеры, сохранения изображений в локальную базу данных и отображения состояния мишени в реальном времени.

Поперечный размер пучка протонов определен тремя способами. В первом способе протонным пучком облучают титановый образец без обеспечения хорошего теплового контакта с теплоотводящей поверхностью; через непродолжительное время в образце образуется отверстие диаметром 11 мм. Во втором способе обеспечивают хороший тепловой контакт титанового образца с теплоотволящей поверхностью и не допускают прожигания отверстия и распыления титана. Поскольку взаимодействие протонов с титаном приводит к наработке радиоактивных изотопов ванадия с периодами полураспада 33 мин, 16 и 330 суток, то область под пучком становится радиоактивной. Ее размер определяют измерением активности образца NaI  $\gamma$ -спектрометром путем последовательного увеличения коллимационного отверстия от 8 до 20 мм с шагом 2 мм. В этом способе поперечный размер пучка составил 12 мм. В третьем способе, подробно описанном далее, профиль пучка определен по распространению границы области блистеринга со временем облучения. Размер пучка протонов на полувысоте составил 8,9 мм по горизонтали и 12,4 мм по вертикали с точностью 5 %. Эффективная площадь пучка, определяемая как отношение тока к максимальной плотности тока, составила величину 75±7 мм<sup>2</sup>. Принимая площадь пучка равной 75 мм<sup>2</sup>, получим, что 1 мА ч интеграла тока соответствует флюенсу частиц  $3 \pm 0.3 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>.

После облучения образцы исследуют на рентгеновском дифрактометре SHIMADZU XRD-7000 (Shimadzu Co., Япония), на лазерном сканирующем 3D-микроскопе KEYENCE VK-X200 (Keyence Co., США), на электронном микроскопе Jeol JCM-5700 и на электронном микроскопе со сфокусированным ионным пучком FIB-SEM Helios G3 UC (FEI, США). Были исследованы четыре медных образца (образцы № 1-4), 4 образца, в которых на медные образцы различными способами (взрыв, диффузия, пайка) приварена танталовая фольга толщиной порядка 100 мкм (образцы № 5-8) и образец № 9, в котором верхний слой толщиной порядка 100 мкм сделан из порошков тантала и меди в соотношении 1:1 по объему.

Образец № 1. Образец из мелкозернистой меди чистотой 99,996 % (OFC-1 JIS H3150 C1011, SH Copper Products Co., Ltd, Япония) облучили протонами до флюенса 5,6 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>. Ток протонного пучка был равен 524 ± 28 мА, температура поверхности образца, измеряемая пирометром, — 82 ± 16 °C, максимальная температура, измеряемая инфракрасной камерой, — 152 °C. Динамика блистерообразования представлена на рис. 10.2. Размер кадра, приведенного на рис. 10.2 и далее



Рис. 10.2. Фотографии поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,996 % при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0 (*a*), 0,01 (*b*), 0,15 (*b*), 0,40 (*c*), 1,00 (*d*), 1,87 мА·ч (*e*). Размер кадра 9 × 4 мм

на рис. 10.4 и 10.8, соответствует на образце размеру 9 мм по горизонтали и 4 мм по вертикали. Видно, что сразу после начала облучения произошло формирование рельефа поверхности, связанное с прогревом металла в вакууме (рис. 10.2,  $\delta$ ). Блистеры на поверхности образца стали появляться с флюенса 0,45 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup> (рис. 10.2,  $\beta$ ) и далее при увеличении флюенса их количество росло (рис. 10.2,  $\epsilon$ -e).

Для определения характерного размера блистеров области потемнения изображения, представленного на рис. 10.2, *е*, заключены в прямоугольники. Результат представлен на рис. 10.3, *а*. На рис. 10.3, *б* представлена гистограмма распределения размера стороны прямоугольника, который соответствует размеру блистера. Размер блистеров составил  $40 \pm 20$  мкм.



Рис. 10.3. Результат обработки снимка (*a*) и гистограмма (*б*) распределения размеров блистеров на поверхности мелкозернистой меди чистотой 99,996 %. Размер кадра 9 × 4 мм

Образцы № 2 и № 3. Образцы из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Со. (Япония) облучили протонами до флюенса 5,6 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>. Ток протонного пучка равен 526±31 мА, температура поверхности образца, измеряемая пирометром, — 83±8 °С, максимальная температура, измеряемая инфракрасной камерой, — 161 °С.

На рис. 10.4 приведены фотографии поверхности образца № 2, демонстрирующие динамику блистерообразования. Объект, видимый в правом углу снимков, есть метка, процарапанная на поверхности образца в центре для позиционирования. Видно, что в самом начале облучения произошло формирование рельефа поверхности в виде полос, характерное при прогреве металлов в вакууме (рис. 10.4, *б*), затем появились маленькие блистеры (рис. 10.4, *в*), а при флюенсе 1,5 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup> с левого нижнего угла стали появляться большие (рис. 10.4, *е*), которые со временем заполнили всю видимую область. Распространение



Рис. 10.4. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % (образец № 2) при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0 (*a*), 0,04 (*б*), 0,25 (*в*), 0,50 (*е*), 1,00 (*д*), 1,89 мА·ч (*е*). Размер кадра 9 × 4 мм

блистеров слева направо обусловлено тем, что центр пучка протонов в данном случае находится в левом углу.

Во время облучения изображения ССD-камеры сохраняются каждые тридцать секунд. В частности, в данном случае длительность облучения образца составила 4 ч 38 мин, было сохранено 457 снимков. На рис. 10.5 представлена зависимость изменения яркости снимка относительно яркости первого снимка B от интеграла тока  $\Phi$ . Здесь величина B определяется как

$$B_j = \sum_{i=1}^{N} \frac{|B_{1,i} - B_{j,i}|}{255 \cdot N},$$


Рис. 10.5. Зависимость изменения яркости снимка B от набранного интеграла тока протонов  $\Phi$ 

где  $B_{ii}$  — яркость пиксела i (от 0 — черного пиксела до 255 белого) снимка *j* (в данном случае *j* изменяется от 1 до 457), *N* количество пикселей снимка или обрабатываемой области (в данном случае  $N = 1\,447\,680$ ). Видно, что сразу после начала облучения произошло потемнение снимков, что связано с появлением полос из-за тепловой нагрузки образца, затем некоторое просветление снимков, а с интеграла тока 0,5 м $A \cdot ч$  (флюенс 1,5 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>) снова началось отчетливое потемнение, что объясняется появлением блистеров. Таким образом, из рис. 10.4 и рис. 10.5 можно заключить, что блистеры на поверхности крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Co. (Япония) появляются при флюенсе протонов  $1.5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ . Эта величина в 3,3 раза больше величины флюенса появления блистеров на поверхности образца 1 — мелкозернистой меди чистотой 99,996 % (OFC-1 JIS H3150 C1011, SH Copper Products Co., Ltd, Япония). Размер блистеров определили по процедуре, реализованной на образце № 1: он составил 170±50 мкм.

На рис. 10.6 представлены фотографии части поверхности образца, сделанные на электронном микроскопе со сфокусированным ионным пучком FIB-SEM Helios G3 UC. На рис. 10.6, *а* видно, что поверхность покрыта блистерами с характерным размером 100 мкм. Один из таких блистеров разрезан ионным пучком, его изображение представлено на рис. 10.6, *б*. Видно, что внутри металла на глубине 10–20 мкм образовалась полость. Поскольку длина пробега протонов с энергией 2 МэВ в меди равна 19 мкм, то можно уверенно утверждать, что образование полости в металле произошло в месте остановки протонов. Также на поверхности присутствуют блистеры существенно меньшего размера. Один из таких блистеров размером 8 мкм представлен на рис. 10.6, *в*. Этот блистер также разрезан ионным пучком



Рис. 10.6. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996%, сделанные на электронном микроскопе со сфокусированным ионным пучком FIB-SEM Helios G3 UC. На *а*, *б* и *г* виден блистер, специально разрезанный ионным пучком

и его изображение представлено на рис. 10.6, г. Видно, что толщина металла над полостью составляет всего 2 мкм. Возможно, образование этого и подобных блистеров связано не с облучением пучком протонов с энергией 2 МэВ, а с облучением сопутствующим потоком положительных ионов аргона с энергией 1 МэВ, которые образовались в газовой обдирочной мишени, размещенной внутри высоковольтного терминала, при взаимодействии пучка ионов водорода с обдирочным газом, аргоном. Хотя поток положительных ионов аргона мал, но изза меньшей энергии и большей массы глубина проникновения ионов аргона существенно меньше, и образование блистером происходит при меньшем флюенсе.

Рентгенодифрактометрическое исследование облученной поверхности медных образцов проведено на дифрактометре SHIMADZU XRD-7000 (Си $K_{\alpha}$ -излучение, Ni-фильтр, схема Брэгга–Брентано) при комнатной температуре. В качестве внешнего эталона использованы LaB<sub>6</sub> (SRM-660a) и Si (SRM-640c). Полученные дифрактограммы проиндицированы с использованием данных для гранецентрированной кубической структуры (ГЦК) меди [252]:  $a_{3талон} = 3,6149$  Å. Полнопрофильное уточнение выполнено по программе PCW [253]. Параметры

ГЦК ячейки рассчитывали, исходя из положения отражения  $2\theta_{220}$ , на котором дублет  $CuK_{\alpha 1,2}$  достаточно хорошо разделен, и при вычислениях межплоскостных расстояний d<sub>220</sub> можно использовать длину волны  $\lambda_{CuK\alpha 1} = 1,5406$  Å. Значения полуширины отражений (220) на дифрактограммах исследованных образцов были использованы для оценки размеров кристаллитов (ОКР) по формуле Селякова-Шеррера. При этом уширение отражения (220) оценивали относительно аналогичного отражения образца, не подвергнутого облучению. Исследование показало, что этот образец представляет собой поликристаллическую фазу меди со значительной преимущественной ориентацией (текстурой) кристаллитов в направлении [220]. Об этом свидетельствуют заниженные значения I/I0 отражений (111) и (200). Сравнение дифрактограмм образцов показывает, что облучение протонами приводит к увеличению полуширины линии (200) от 0,10 20 до 0,22 20, что указывает на уменьшение размеров областей когерентного рассеяния на поверхности образца с величины более 360 нм до 160 нм.

Рентгенодифрактометрическое исследование показало, что образцы № 2 и № 3 (крупнозернистая медь чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Co. Япония) отличаются преимущественной ориентацией кристаллитов: в образце № 2 в направлении [200], а в № 3 в направлении [111]. Ориентация [111] соответствует кристаллографической плоскости, наиболее плотно заполненной атомами меди. По этой причине представлялось интересным выяснить возможное влияние ориентации кристаллитов на процесс образования блистеров.

Динамика блистерообразования на образце № 3 представлена на рис. 10.7. В данном эксперименте для возможности наблюдения за большей поверхностью образца увеличение удаленного микроскопа уменьшено в 2 раза путем убирания конвертера двукратного увеличения (CF-2 objective). CCD-камера развернута на 90° относительно оптической оси. Размер кадра, приведенного на рис. 10.7, соответствует на образце размеру 12 мм по горизонтали и 12 мм по вертикали. Порог образования блистеров составил значение  $1,5 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>, такое же, что и при облучении образца № 2. Следовательно, ориентация кристаллитов не влияет на порог образования блистеров.

Следует обратить внимание на то, что после появления блистеров дальнейшее облучение не приводит к модификации поверхности. Так, область, подвергаемая действию максимально плотного протонного пучка и покрытая блистерами (рис. 10.7, *в*), практически не изменилась при увеличении флюенса в 4 раза: от  $1,5 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> до  $6 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>. Это может быть объяснено следующим образом. Поглощение протонов в меди на глубине 19 мкм формирует область повышенной концентрации водорода. Происходит агломерация захваченных



Рис. 10.7. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % (образец № 3) при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0,02 (*a*), 0,10 (*b*), 0,59 (*b*), 0,70 (*c*), 1,00 (*d*), 2,00 мА·ч (*b*). Размер кадра 12 × 12 мм

атомов водорода, приводящая к образованию газовых пузырьков внутри металла. При достижении критического давления газа поверхностный слой деформируется — появляются блистеры в виде чешуек или в виде полых пузырей. Поскольку дальнейшее облучение не приводит к модификации поверхности, то водород, который поступает в эту полость, уходит из нее в вакуум через отверстия или трещины, образовавшиеся при всплывании чешуйки или пузыря.

Размер блистеров определили по процедуре, реализованной на предыдущих образцах; он составил  $170 \pm 50$  мкм.

В область изображения попадала большая часть облучаемой поверхности, поэтому динамика распространения границы области, покры-



Рис. 10.8. Границы области, покрытой блистерами, для разных значений флюенса протонов (в ед. мА·ч). Шаг сетки равен 1 мм

той блистерами, позволила восстановить поперечный профиль пучка протонов. На рис. 10.8 представлен результат обработки снимков, на котором эллипсами описаны границы области, занятой блистерами, при разных значениях флюенса протонов. Видно, что пучок протонов не симметричный: он вытянут по вертикали и максимум плотности тока смещен вверх. Пучок занимает область диаметром 16 мм. Размер пучка протонов на полувысоте составляет 8,9 мм по горизонтали и 12,4 мм по вертикали с точностью 5%. Эффективная площадь пучка, определяемая как отношение тока к максимальной плотности тока, равна  $75 \pm 7 \text{ мм}^2$ .

Образец № 4. Образец из мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Со. (Япония) облучили протонами до флюенса 6 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>. Ток протонного пучка равен 536 ± 34 мА. На рис. 10.9 приведены фотографии поверхности образца № 4, демонстрирующие динамику блистерообразования, на рис. 10.10 — фотографии поверхности образца после облучения.

Блистеры на поверхности мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Co. (Япония) появляются при флюенсе протонов 3 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>. Эта величина почти в 7 раз больше величины флюенса появления блистеров на поверхности образца № 1 — мелкозернистой меди чистотой 99,996 % (OFC-1 JIS H3150 C1011, SH Copper Products Co., Ltd, Япония) и в 2 раза больше флюенса появления блистеров на поверхности образца № 2 крупнозернистой меди чистотой 99,9996 % производства Mitsubishi Materials Co. (Япония). Размер блистеров составил 155±45 мкм.

Образцы № 5 и № 6. Образцы № 5 и № 6 представляют собой медные диски с танталовой фольгой, приваренной взрывом. Образцы



Рис. 10.9. Фотографии поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,99996% (образец № 4) при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0 (*a*), 0,01 (*б*), 0,50 (*в*), 1,00 (*г*), 1,50 (*д*), 1,97 мА·ч (*е*). Размер кадра 9 × 4 мм



Рис. 10.10. Фотографии поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % после облучения протонным пучком, сделанные на электронном микроскопе Jeol JCM-5700



Рис. 10.11. Скриншот программы определения толщины танталового слоя

изготовлены следующим образом: заготовки из меди и тантала сваривали между собой взрывом, прокатывали с уменьшением толщины в 6 раз, разрезали, обрабатывали до требуемого размера, полировали и отжигали при 500 °C в течение 5 ч. На рис. 10.11 представлен скриншот программы, использованной для определения толщины тантала по фотографии специально сделанного разреза. Видно, что танталовый слой однородный, его толщина равна 160 ± 5 мкм.

Облучение протонами осуществляется со стороны тантала. Образец № 5 облучен до флюенса  $6 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> — никаких видимых модификаций поверхности не зарегистрировано (рис. 10.12). Ток протонного пучка равен  $437 \pm 96$  мА, температура поверхности образца, измеряемая пирометром, —  $125 \pm 20$  °C ( $137 \pm 9$  °C при выборке тока  $505 \pm 16$  мА).



Рис. 10.12. Фотографии поверхности образца  $\mathbb{N}$  5 и после ее облучения протонами энергией 2 МэВ до флюенса  $1,6 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> (*a*) и  $5,2 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> (*б*)



Рис. 10.13. Зависимость тока протонного пучка *I* (сверху) и показаний пирометра *T* (снизу) от набранного интеграла тока

Образец № 6 был облучен до флюенса, в 10 раз большего, до 6,7 ×  $\times 10^{20}$  см<sup>-2</sup>. На рис. 10.13 представлена зависимость температуры образца, измеряемого пирометром, от величины набранного флюенса. Проведение измерений сериями обусловлено тем, что было только одно вакуумное окно, через которое измеряли температуру пирометром либо тепловизором. Также на этом графике представлено временное поведение тока протонного пучка. Стабильность тока в сериях составляла 2%, хотя по виду графика может показаться большей, поскольку количество представленных значений тока, как и температуры, составляет 83527. Видно, что температура поверхности образца растет с набранным флюенсом. Так, в начале облучения при флюенсе в районе 2 мА · ч температура была 167 ± 2 °C при токе 502 ± 9 мА, а в конце, при набранном флюенсе 19–20 мА · ч — 260 ± 3 °C при токе 512 ± 8 мкА.

Очевидно, что измеряемый пирометром рост температуры связан не только с собственно ростом температуры поверхности образца, но и с изменением коэффициента черноты. Для исключения фактора изменения коэффициента черноты проведена калибровка образца как до облучения, так и после с применением термопары и нагрева образца горячим воздухом через каналы охлаждения. Проведенная калибровка позволила констатировать, что с увеличением набранного флюенса протонов температура поверхности образца увеличилась со 167 °С не до 260, а до 208 °С. Таким образом, в процессе облучения тантала протонами измерено увеличение температуры поверхности образца со 167 °С в начале до 208 °С в конце при токе протонов 500 мкА.



Рис. 10.14. Фотографии поверхности образца № 6, сделанные на электронном микроскопе Jeol JCM-5700 до облучения (*a*, *s*) и после облучения до флюенса 6,7 · 10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup> (*б*, *c*)

Видимая модификация поверхности стала наблюдаться с флюенса  $3,6 \cdot 10^{20}$  см<sup>-2</sup> (рис. 10.14), но, как показали измерения на электронном микроскопе, модификация не связана с появлением блистеров, как таковых. Блистеры в виде пузырьков или чешуек не обнаружены вплоть до флюенса  $6,7 \cdot 10^{20}$  см<sup>-2</sup>. Поверхность, подвергнутую облучению, можно описать как рельефную с характерным размером ячеек порядка 1 мкм.

Оба образца № 5 и № 6, а также образец, не подвергнутый облучению, исследованы на дифрактометре по методике, описанной ранее. Параметры объемно центрированной кубической (ОЦК) ячейки тантала рассчитывали, исходя из положения отражения  $2\theta_{321}$ , на котором дублет Си $K_{\alpha 1,2}$  достаточно хорошо разделен и при вычислениях межплоскостных расстояний  $d_{220}$  можно использовать длину волны  $\lambda$ Си $K_{\alpha 1} = 1,5406$  Å. Значения полуширины отражений (FWHM) на дифрактограммах исследованных образцов использованы для оценки размеров областей когерентного рассеяния (ОКР). При этом уширение

Образец	2 $ heta_{321},$ град	d <sub>321</sub> , Å	a, Å	$\Delta$ , Å	FWHM, 2 <i>θ</i> , град	ОКР, нм	Состояние
Эталон тантала	121,351	0,8835	3,3058				Поликристалл
Необлу- ченный	121,288	0,8838	3,307(2)	0,001	0,546	40	Поликристалл
№ 5	121,050	0,8848	3,311(2)	0,005	0,647	33	Текстура [200]
№ 6	120,000	0,8895	3,328(2)	0,0223	0,648	33	Текстура [200]

Таблица 10.1. Рентгенографические характеристики исследованных образцов тантала

отражений (321) оценивали относительно эталона Si. Рентгенографические характеристики образцов сведены в табл. 10.1.

У образца, не подвергавшегося воздействию, параметр ОЦК ячейки (3,307(2) Å) в пределах погрешности совпадает с эталонным значением для тантала. Уширение дифракционных отражений относительно эталона может свидетельствовать о наличии микронапряжений, связанных с подготовкой поверхности шайбы. У образцов №5 и №6 имеется преимущественная ориентация кристаллитов (текстура) в направлении [200]. У образца №5 значение параметра *а* на 0,005 Å больше эталонного значения. Возможно, появление текстуры связано с подготовкой образцов. Также у этого образца заметно уширились дифракционные отражения, что может свидетельствовать о некотором уменьшении размеров областей когерентного рассеяния. Значение параметра а образца №6 равно 3,328(2) Å, что на 0,022 Å больше эталонного. Если ориентироваться только на внедрение водорода в решетку тантала, то можно сделать примерные оценки исходя из литературных данных. Так, в [252 (№ 89-4073); 254] описана фаза ТаНо1 с параметром a = 3,327 Å, т.е. в пределах погрешности совпадающим с измеренным нами значением. Таким образом, в образце №6 в кристаллическую структуру тантала внедрен водород. Можно полагать, что на каждые 10 атомов тантала приходится один атом водорода.

Образцы № 7, № 8 и № 9. Образец № 7 изготовлен путем пайки танталовой фольги толщиной 50 мкм к медному диску через припой серебро-палладий, образец № 8 — диффузионной сварки (500 °С, 5 ч) медного диска с танталовой фольгой толщиной 50 мкм, на которую предварительно напылили 200 нм слой меди; образец № 9 — нанесения плазменной дугой на медный диск 100 мкм сплава медь-тантал в соотношении 1:1 по объему. Выяснено, что все соединения устойчивы к нагреву — ни на одном образце не произошло отслоения или разрушения танталового слоя. Установлено, что при одинаковой мощности нагрева

№	Технология	Ток, мкА	Темпера- тура, °С пирометр	Максимальная температура, °С тепловизор
5	Сварка взрывом	$505\pm16$	$137\pm9$	
7	Пайка	$500\pm16$	247	360
8	Диффузионная сварка	$505\pm20$	155	280
9	Дуговое напыление (1:1)	$505\pm15$	$143\pm9$	250

Таблица 10.2. Температура образцов при облучении протонами

температура поверхности образцов разная (табл. 10.2): наименьшая у образца № 5 (взрыв), далее по возрастающей у образца № 9 (сплав), потом у образца № 8 (диффузионная сварка) и максимальная у образца № 7 (пайка). Разница объясняется разным тепловым контактом поверхностей и разной толщиной танталовой фольги. Для исследования поведения образца при длительном облучении был выбран образец с наименьшей температурой нагрева поверхности — полученный взрывом. Результаты исследования образца № 6 уже приведены выше.

Результаты проведенных исследований по облучении 2 МэВ протонами различных образцов сформулируем следующим образом.

- Порог образования блистеров на поверхности меди зависит от чистоты меди, в более чистой меди он больше. Максимальное значение порога составляет величину 3 · 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>, минимальное — в 7 раз меньшее.
- 2. Размер блистеров на поверхности меди зависит от чистоты меди, в более чистой блистеры больше. Размер блистеров варьируется от  $40\pm20$  до  $160\pm50$  мкм.
- 3. Зависимости порога образования блистеров от ориентации кристаллитов меди не обнаружено.
- После появления блистеров на поверхности меди дальнейшее облучение не приводит к модификации поверхности, что может быть связано с образованием отверстий и трещин при всплывании блистеров.
- Приварка тонкой танталовой фольги к меди путем сварки взрывом, диффузионной сварки или пайки устойчива к тепловой нагрузке до 1 кВт/см<sup>2</sup>.
- 6. Тантал значительно более устойчив к образованию блистеров, чем медь. Порог образования блистеров в виде пузырей или чешуек на поверхности тантала превышает 6,7 · 10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup>. При флюенсе 3,6 · 10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup> происходит модификация поверхности в виде рельефа с характерным размером ячеек 1 мкм.

7. В процессе облучения тантала зафиксировано увеличение температуры поверхности образца, что может быть связано с уменьшением теплопроводности за счет появления полостей и внедрения водорода в кристаллическую структуру тантала.

Применительно к проблеме создания литиевой нейтроногенерирующей мишени для ускорительного источника эпитепловых нейтронов с целью проведения бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей полученные результаты означают следующее.

- Сверхчистая медь может быть использована для изготовления подложки мишени, используемой для терапии нескольких пациентов, ориентировочно двадцати.
- 2. Не очевидно, что после появления блистеров на поверхности медной подложки мишени ее нельзя будет продолжать применять для генерации нейтронов, поскольку накапливаемый водород может уходить через отверстия и трещины, образующиеся при всплытии блистеров, а уменьшение теплопроводности из-за блистеров не будет критическим для расплавления лития.
- Использование тонкого слоя тантала, нанесенного на теплоотводящую медную подложку, увеличивает срок стойкости мишени к блистерингу не менее, чем в 10 раз по сравнению с наиболее стойкой медной подложкой.
- 4. Поглощение протонов в танталовом слое мишени ведет к уменьшению теплопроводности за счет образования полостей и внедрения водорода в кристаллическую структуру тантала и, как следствие, ведет к заметному увеличению температуры лития, что может быть критическим даже без модификации поверхности блистерами.

Второе утверждение об отсутствии модификации поверхности после появления блистеров и предположение о том, что при формировании блистеров в них образуются отверстия или трещины, а водород, доставляемый пучком протонов в полость блистера, выходит через отверстия или трещины и не модифицирует поверхность, требовало экспериментальной проверки. Если это действительно так, то накапливаемый водород будет уходить через отверстия и трещины, а уменьшение теплопроводности из-за блистеров не будет критическим для расплавления лития, то тонкую литиевую мишень можно будет использовать для генерации нейтронов после появления блистеров.

Эти предположения послужили основанием для исследования влияния радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени, результаты которого представлены в главе ниже.

## 10.2. Исследование влияния радиационного блистеринга поверхности меди на выход нейтронов из литиевого слоя

После напыления лития на стенде напыления мишенный узел с исследуемым образцом — литиевой нейтроногенерирующей мишенью переносят на установку, где мишенный узел подсоединяют к горизонтальному тракту транспортировки пучка протонов. Образец облучают пучком протонов диаметром 10 мм с током 500 мкА. Перед облучением образца в тракт транспортировки пучка протонов вдвигают цилиндр Фарадея, оснащенный девятью термосопротивлениями для контроля положения пучка. После того, как получают протонный пучок с током 500 мкА и выставляют пучок по центру, цилиндр Фарадея выдвигают обратно, и пучок протонов облучает образец. Ток пучка протонов измеряют и контролируют бесконтактным датчиком тока. Через один из патрубков со стеклом из плавленого кварца осуществляют in situ наблюдение за поверхностью образца длиннофокусным микроскопом KX InfiniMax<sup>TM</sup> (DistaMaxTM, Infinity Photo-optical Co. CIIIA) c CMOS камерой Basler Ace acA411230uc. Через этот же патрубок образец подсвечивают галогенной лампой источника света LFP-10WP-R (Shibuya, Япония) мощностью 10 Вт. Через второй патрубок со стеклом из фторида бария сначала контролируют положение пучка протонов на исследуемом образце тепловизором FLIR, а затем осуществляют наблюдение за поверхностью образца видеокамерой Hikvision.

Измерение мощности дозы нейтронного излучения осуществляют двумя блоками детектирования БДМН-100-07 (ООО «Доза», Россия). Один из блоков детектирования, дозиметр № 1, размещен на стене радиационно-защищенного помещения на расстоянии 5,4 м от образца под углом 22° к направлению пучка протонов. Второй блок, дозиметр № 2, размещен на расстоянии 1,5 м от центра образца под углом 90° к направлению пучка протонов.

Измерение потока нейтронов осуществляют детектором нейтронов с литий-содержащим сцинтиллятором GS20 (The Saint-Gobain Crystals, CША), смонтированным на фотоэлектронном умножителе Hamamatsu R6095 с высоковольтным источником питания MHV12-1.5K1300P (TRACO Electronics, Япония). Детектор размещен на расстоянии 5,46 м от образца под углом 132° к направлению пучка протонов.

После облучения образцы исследуют на спектрометре комбинационного рассеяния LabRAM HR Evolution (HORIBA Scientific, Япония), на монокристальном дифрактометре Карра APEX DUO (Bruker, Германия), на электронном микроскопе DM 5000 (Leica, Германия), на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами разработки Института автоматики и электрометрии СО РАН (Новосибирск, Россия), на растровом электронном микроскопе EVO 50 XVP (Zeiss, Германия), на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой параллельного действия с аксиальным и радиальным обзором плазмы ICPE-9820 (Shimadzu, Япония).

Реакция <sup>7</sup>Li(*p*, *n*)<sup>7</sup>Ве пороговая, что означает, что генерация нейтронов происходит при энергии протонов больше пороговой энергии, в данном случае 1,882 МэВ. В соответствии с результатами расчетов, приведенными в статье [49], выход нейтронов растет линейно при увеличении энергии протонов с 1,910 до 2,000 МэВ: достоверность линейной аппроксимации значений, рассчитанных с шагом 0,01 МэВ,  $R^2 = 1$ . В этом диапазоне энергии протонов  $E_p$  выход нейтронов может быть представлен выражением  $Y = 9,5345 \cdot 10^{10}$  ( $E_p - 1,885$ ) мКл<sup>-1</sup>, где  $E_p$  подставляется в мегаэлектронвольтах. Заметим, что эта прямая линейной аппроксимации данных пересекает ось абсцисс не при значении порога реакции в 1,882 МэВ, а при несколько большем значении — 1,885 МэВ.

Линейность выхода нейтронов от энергии протонов применена для калибровки омического делителя напряжения, предназначенного для измерения потенциала, подаваемого на высоковольтный электрод ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией. Измерение потенциала осуществляют с частотой 1 Гц и используют в программе управления установкой для поддержания потенциала высоковольтного электрода ускорителя на заданном уровне. Ранее при эксплуатации ускорителя замечено, что потенциал высоковольтного источника питания и, как следствие, энергия протонов плавно уменьшаются в течение рабочего дня. Возможно, это связано с непропорциональным изменением сопротивления плеч омического делителя при его нагреве. Как установлено при проведении данных исследований, в течение 5 ч непрерывной работы ускорителя при токе 500 мкА энергия протонов уменьшается на 0,65 %. Такое относительно небольшое уменьшение энергии протонов из-за порогового характера реакции  ${}^{7}Li(p,n){}^{7}Be$  ведет к уменьшению выхода нейтронов на значительно бо́льшую величину — 11 %.

Для того чтобы определить выход нейтронов с лучшей точностью, чем 11 %, проводилась калибровка омического делителя. В программе управления установкой выставляют напряжение высоковольтного источника питания  $U_1 = 0,95$  MB. При энергии инжектируемых в ускоритель отрицательных ионов водорода 20 кэВ это должно обеспечить получение протонного пучка с энергией 1,92 МэВ. В течение нескольких минут дозиметром № 1 измеряют мощность дозы нейтронного излучения  $D_1$ . Затем напряжение высоковольтного источника питания поднимают до  $U_2 = 1,01$  MB, доводя энергию протонов до 2,04 МэВ, и повторяют измерения дозы  $D_2$ . На графике зависимости дозы от напряжения через точки  $(U_1, D_1)$  и  $(U_2, D_2)$  проводят прямую линию до пересечения с осью абсцисс и определяют координату пересечения  $U_0$ . Если  $U_0 \neq U_{\rm thr} = 0,9325$  MB, это означает, что напряжение высоковольтного источника питания отличается от выставленного значения. Отличие напряжения от выставленного не превышает 0,65% и учитывается в измеряемом выходе нейтронов дополнительным членом  $U_{\rm thr}/U_0 \approx 1$ . Выход нейтронов с учетом поправки на калибровку делителя считаем как  $(D_2 - D_1) \cdot U_{\rm thr}/U_0$ . Выход нейтронов прямо пропорционален углу наклона прямой зависимости дозы нейтронного излучения от напряжения: он тем больше, чем больше угол.

**10.2.1. Экспериментальные результаты. Серия I.** В первой серии экспериментов на медный образец напылен слой лития толщиной больше толщины, на которой генерируют нейтроны в результате пороговой реакции  $^{7}$ Li $(p, n)^{7}$ Be, но меньше пути, пройденного протоном в литии до его остановки.

При выборе толщины слоя лития используют выражение скорости потери энергии протона S в литии в зависимости от его энергии E, приведенное в работе [108]:

$$S = rac{S_{
m low} \cdot S_{
m high}}{S_{
m low} + S_{
m high}} \; \mathrm{sB}/(10^{15} \; \mathrm{atomob/cm}^2),$$

$$S_{\text{low}} = 1,6E^{0,45}, \quad S_{\text{high}} = \frac{725,6}{E} \ln\left(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578E\right)$$

Е берется в килоэлектронвольтах. Используя эту формулу, получим, что длина пробега в литии составляет 169 мкм для протона с энергией 2,04 МэВ и 147 мкм для 1,882 МэВ. Следовательно, при начальной энергии протонов 2,04 МэВ генерация нейтронов осуществляется до глубины 22 мкм от поверхности лития.

Исследуемый образец изготовлен из 99,996 % мелкозернистой меди (OFC-1 H3150 C1011, SH Coper Products Co., Ltd., Япония). На образец напылен литий толщиной 84 мкм, его использовано 237 мг. Образец облучали пучком протонов с током  $500 \pm 10$  мкА в течение 11 дней по 4 ч в день. Полный набранный интеграл тока протонов на образце составил 21,08 мА ч.

Облучение образца пучком протонов осуществляют при энергии протонов 1,8 МэВ, ниже порога генерации нейтронов, и кратковременно при бо́льшей энергии, 1,92 и 2,04 МэВ, для определения выхода нейтронов.

Обратим внимание на то, что при проведении данных исследований получают пучок протонов с параметрами, подобными тем, что получали при *in situ* наблюдении блистеринга на меди при имплантации

где

2 МэВ протонов. В частности, по распространению границы области с блистерами определили эффективную площадь пучка как отношение силы тока к его максимальной плотности; она составила величину  $75 \pm 7$  мм<sup>2</sup>. Принимая площадь пучка, равной 75 мм<sup>2</sup>, получим, что при набранном интеграле тока 21,08 мА·ч в центре пучка флюенс протонов составил ( $6,3 \pm 0,6$ )  $10^{20}$  см<sup>-2</sup>. Ранее определено, что на поверхности меди чистотой 99,996 % блистеры появляются при интеграле тока 0,15 мА·ч при имплантации протонов с энергией 2 МэВ. В данном случае протоны теряют часть энергии на литии и входят в медь с энергией 1 МэВ, останавливаясь в ней на глубине 7 мкм. Поскольку считается, что порог образования блистеров зависит от энергии как  $E^{0,4}$  [237], то при имплантации меди протонами с энергией 1 МэВ блистеры должны были появиться с несколько меньшего интеграла тока — 0,11 мА ч.

Выход нейтронов, измеренный дозиметром №1, в зависимости от набранного интеграла тока протонов представлен на рис. 10.15, выход нейтронов, измеренный детектором нейтронов, — на рис. 10.16.



Рис. 10.15. Зависимость выхода нейтронов *D*, измеренного дозиметром № 1, от набранного интеграла тока протонов Ф



Рис. 10.16. Зависимость выхода нейтронов Y, измеренного детектором нейтронов, от набранного интеграла тока протонов  $\Phi$ 

Ожидалось [236-246], что после появления блистеров выход нейтронов может значительно уменьшиться. Но из рис. 10.15 и 10.16 видно, что ожидаемой деградации выхода нейтронов нет. С точностью 7 % можно утверждать, что облучение мишени до флюенса, почти в 200 раз большего флюенса появления блистеров, не привело к деградации выхода нейтронов. Зависимости, представленные на рис. 10.15 и 10.16, позволяют сформулировать результат, который изначально был целью исследования: появление блистеров на поверхности медной подложки нейтроногенерирующей мишени с литиевым слоем не ведет к деградации выхода нейтронов. Применительно к проблеме бор-нейтронозахватной терапии этот результат кардинально меняет парадигму: блистеринг не ограничивает время эксплуатации мишени. Во всяком случае, это утверждение относится к мишени, выполненной в виде тонкого слоя лития, нанесенного на медную теплоотводящую подложку. Появление блистеров на поверхности меди не приводит к деградации выхода нейтронов, и мишень можно продолжать использовать для терапии до 340 пациентов, как можно прогнозировать из достигнутой в данном эксперименте плотности флюенса протонов при планируемом токе протонов 10 мА, диаметре мишени 10 см и времени терапии 40 мин [158].

Несмотря на то, что основной результат исследования получен, проведены дальнейшие исследования, чтобы выяснить детали процессов, приводящих к такому результату.

В течение всего времени облучения осуществляют мониторинг поверхности исследуемого образца длиннофокусным микроскопом KX InfiniMax<sup>TM</sup> с CMOS-камерой Basler Ace acA4112-30uc и видеокамерой Hikvision и производят запись видеосигналов. Появление и исчезновение блистеров отчетливо наблюдают в разных местах поверхности мишени. Так, на рис. 10.17 представлены две области изображения



Рис. 10.17. Изображение мишени, снятое длиннофокусным микроскопом на 6-й день облучения: слева — в центре пучка протонов, справа — на периферии. Размер изображений 50 мм по горизонтали и 60 мм по вертикали

длиннофокусного микроскопа шестого дня облучения. Видно, что в центре пучка протонов поверхность лития однородная и блистеров нет, а на периферии пучка блистеры видны отчетливо. Количественно модификацию поверхности лития блистерами определяют как площадь повышенной яркости в выбранной части изображения. Программным образом подвергают обработке каждый 720-й кадр файла видеосигнала, т. е. обрабатывают изображения, следующие с шагом 30 с. Для этого выделяют области повышенной яркости, соответствующие блистерам, и определяют площадь этих областей в двух зонах изображения: в центре пучка и на периферии. Результат обработки видеосигнала микроскопа представлен на рис. 10.18. Здесь по оси ординат отложено



Рис. 10.18. Зависимость площади повышенной яркости выбранной части изображения (1 — в центре пучка протонов, 2 — на периферии) от последовательности обработанных кадров изображения, сгруппированных по дням облучения

значение площади повышенной яркости выбранной части изображения (в центре пучка и на периферии), по оси абсцисс — последовательность обработанных кадров изображения, сгруппированных по дням облучения: 1 февраля 2019 г., 4 февраля и так до 15 февраля. Для наглядности на графике проставлены вертикальные линии, отделяющие один день облучения от другого. Обратим внимание, что, хотя облучение в течение 11 дней проводили по 4 ч, количество обработанных кадров в день различается. Это связано с тем, что в первый день облучения настраивали микроскоп, и с тем, что зачастую, особенно ближе к концу эксперимента, на данное окно наблюдения устанавливали тепловизор или пирометр и не записывали изображение с микроскопа. Видно, что в центральной области пучка блистеры на поверхности лития появились достаточно быстро, а затем их количество стало уменьшаться уже в первый день облучения. На следующий день их количество сначала росло, а потом падало. И так повторялось каждый раз, но с постоянным уменьшением количества блистеров вплоть до их отсутствия в последние два дня облучения. На периферии наблюдался плавный рост количества блистеров в течение первых трех дней облучения, а затем — подобные периодические колебания, когда их количество в течение дня сначала росло, а потом уменьшалось, возвращаясь на прежний уровень.

После окончания облучения исследуемый образец снят и помещен в атмосферную среду. Большая часть поверхности лития практически сразу же почернела — эта область не облучалась пучком протонов. Центральная часть образца, облученная пучком, смотрелась серой (серебристой) с некоторым количеством пятен более темного цвета, в одном месте коричневого.

Из разных зон лития с помощью стальной иглы изъяты частицы размером 0,3–0,5 мм и исследованы на монокристальном дифрактометре Карра APEX DUO (Bruker, Германия) в геометрии Дебая–Шеррера по методике, изложенной в работе [255]. При рентгенофазовом анализе полученных дифрактограмм обнаружены фазы LiOH, Li<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>), Li<sub>3</sub>N в области, не облученной пучком протонов, в то время как в области, облученной пучком, в ряде изъятых частиц обнаружены эти фазы, а ряд частиц аморфны. Это свидетельствует о том, что в изъятом образце отсутствует кристаллическая решетка и он является аморфным. Подобный результат получен при исследовании поверхности лития на спектрометре комбинационного рассеяния LabRAM HR Evolution (HORIBA Scientific). Возможно, это связано с радиационными повреждениями исследуемого образца, которые явились следствием длительного облучения протонным пучком.

Затем литий был смыт водой, и образец исследован на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами Института автоматики и электрометрии СО РАН (Новосибирск, Россия). Сенсоры CL1 MG200 и CL4 MG35 (Still SA, Франция) использованы для измерения профиля образца с разрешением 5,7 и 40 нм соответственно. Система перемещения образца позволяет измерять профиль образца на площади  $200 \times 200$  мм с разрешением 100 нм, точностью позиционирования  $\pm 0,4$  мкм и воспроизводимостью  $\pm 0,1$  мкм. Фотография исследуемой поверхности образца представлена на рис. 10.19. Стоит обратить внимание на отчетливый ореол темного цвета 1 толщиной 1 мм с внутренним диаметром 13 мм — он совпадает с расположением пучка протонов основной мощности. На рис. 10.19 также видны центр медного диска мишени (2), блистеры, оставшиеся на периферии



Рис. 10.19. Фотография исследуемой поверхности образца: 1 — ореол темного цвета, 2 — центр медного диска, 3 — блистеры, 4 — поверхность, не подвергнутая облучению протонами

пучка протонов (3), и поверхность медного диска, не подвергнутая облучению протонами (4).

Профиль поверхности образца измерен в прямоугольнике шириной 0,7 мм, длиной 84,9 мм с шагом 1 мкм; центр образца размещен вблизи центра области измерений. Профиль, измеренный вдоль большой стороны прямоугольника и проходящий через центр образца, представлен на рис. 10.20. Здесь центр образца идентифицируется возвышением у координаты абсцисс 39 500; ореол темного цвета, видимый на рис. 10.9, идентифицируется сплошной заливкой у координат 35 000 и 50 000.

Первое, на что следует обратить внимание в измеренном профиле, есть отсутствие ожидаемого углубления в области, подвергнутой интенсивному облучению пучком протонов (на рис. 10.20 это область от координаты абсцисс 35000 до 50000). Считается, что «при флюенсах 10<sup>17</sup>-10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup> поверхностный слой частично или полностью отделяется от объема, что соответствует таким модификациям поверхности, как блистеринг (образование блистеров) и отслаивание чешуек (отшелушивание)» [236]. При флюенсах более 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>, «значительно превышающих критические флюенсы начала блистеринга, блистеры и чешуйки удаляются в результате распыления. Поэтому на поверхность выходят глубинные слои» [236]. Согласно этим представлениям облучение поверхности меди протонами флюенсом, в 200 раз превышающим флюенс начала блистеринга, должно приводить к значительной эрозии металла — разрушению поверхностного слоя металла в результате распыления и расслаивания. Поскольку глубина проникновения протонов в медь составляла 7 мкм, в области интенсивного облучения



Рис. 10.20. Профиль образца вдоль линии, проходящей через его центр

пучком следовало ожидать углубления более 7 мкм, но этого не наблюдается. Удаления поверхностного слоя меди нет.

Объяснение данного явления может состоять в следующем. Поскольку медь покрыта тонким слоем лития, этот слой удерживает крышки блистеров и чешуйки от удаления из этой области. Предположим, что от меди отделился слой толщиной 7 мкм (в виде крышек блистеров и чешуек), но литиевый слой удерживает их на месте, и этот отделившийся слой продолжает подвергаться воздействию протонов. Длительное воздействие протонов могло привести к разрушению кристаллических связей в этом отделившемся слое и перевести его в состояние аморфного тела. После окончания облучения, когда литий был смыт водой, можно было ожидать, что вместе с литием будет смыт и этот «аморфный» слой толщиной 7 мкм, но этого не произошло. Как будет показано далее, литий перемешался с медью, и этот слой литий-медь прочно удерживается на поверхности кристаллической меди, обеспечивая хорошую теплопроводность. Подчеркнем, что при данном объяснении использован термин «аморфная медь». Введение этого термина облегчает повествование, но в то же время требует проведения исследований для подтверждения существования аморфной меди.

Представим подробнее результаты измерений сканирующего профилометра с конфокальными хроматическими сенсорами. Будем двигаться от центра мишени, подвергнутого интенсивному воздействию пучка протонов, к периферии вплоть до необлученной поверхности. На рис. 10.21 представлено изображение центральной области мишени,



Рис. 10.21. Одномерный (*a*) и двухмерный профиль поверхности ореола темного цвета (*б*), обозначенного на изображении (*в*)

двухмерный профиль поверхности и профиль вдоль линии, проходящей через центр мишени. Возвышение в центре высотой 3 мкм и шириной 100 мкм, вероятнее всего, обусловлено изготовлением медного диска на токарном станке. Этим же процессом обусловлены микронные углубления, расходящиеся по спирали от центра мишени. Никаких блистеров или кратеров внутри ореола темного цвета (1 на рис. 10.19) не наблюдается.

Профили поверхности ореола темного цвета (1 на рис. 10.19) представлены на рис. 10.22. На графике профиля поверхности присутствует множество вертикальных линий, обозначающих наличие резких углублений, со склона которых не отражается сканирующий луч лазера. Вполне возможно, что такие мелкомасштабные углубления обусловлены тепловыми разрывами из-за значительного градиента плотности мощности. Вероятнее всего, этот ореол отделяет область высокого



Рис. 10.22. Одномерный (a) и двухмерный профиль поверхности ореола темного цвета (б)

флюенса протонов, в десятки и сотни раз превышающего флюенс образования блистеров, от области низкого флюенса протонов, сопоставимого с флюенсом образования блистеров на поверхности меди. Это согласуется с размером пучка протонов.

За пределами ореола темного цвета уже отчетливо можно увидеть блистеры и кратеры (на рис. 10.20 это область от координаты абсцисс 20 000 до 35 000 и от 50 000 до 65 000). Эта область подвергнута облучению периферийной частью пучка протонов с флюенсом, сопоставимым с флюенсом образования блистеров. Ближе к центру можно наблюдать кратеры (рис. 10.23, *a*) и блистеры с характерным размером 30 мкм (рис. 10.23, *б*), дальше от центра пучка поверхность покрыта блистерами высотой 5–10 мкм и диаметром порядка 100 мкм (рис. 10.23, *в*, *г*).



Рис. 10.23. Изображения поверхности меди, полученные на электронном микроскопе DM 5000 Leica: кратеры (*a*), блистеры (*б*) и (*в*), двухмерный профиль блистера, полученный на сканирующем лазерном профилометре (*г*)

Рельеф поверхности меди, не подвергнутой облучению, представлен на рис. 10.24, где видна структура обработки изделия с шероховатостью менее 1 мкм.

Состав воды, которой литий смыт с поверхности мишени, определен на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой параллельного действия с аксиальным и радиальным обзорами плазмы ICPE-9820 (Shimadzu, Япония). В одном из образцов объемом 5 мл концентрация лития составила 215 ppm, а концентрация меди — 0,24 ppm; в другом — соответственно 365 и 0,16 ppm. Видно, что содержание меди в воде незначительное. Этот факт указывает на то, что какое-либо значимое количество меди не было удалено с поверхности мишени при смытии лития водой.

Основные результаты экспериментов серии I представим следующим образом.

1. Облучение протонами с энергией 2 МэВ мишени, выполненной в виде медного диска, на который нанесен тонкий слой лития, как



Рис. 10.24. Одномерный (*a*) и двухмерный (*б*) профиль поверхности, не подвергнутой облучению протонами

и следовало ожидать, приводит к появлению блистеров на поверхности меди. Флюенс появления блистеров и их размеры соответствуют параметрам предыдущих исследований образования блистеров на поверхности меди без лития. Блистеры на поверхности меди проявляются сквозь слой лития в виде возвышений. Уменьшения выхода нейтронов в реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be из-за появления блистров на поверхности меди не зарегистрировано.

2. Дальнейшее облучение мишени протонами приводит к постепенному исчезновению блистеров в области интенсивного облучения. Какой-либо эрозии меди или удаления поверхностного слоя меди не обнаружено, что может быть обусловлено наличием тонкого слоя лития, удерживающего неизбежно возникающие медные чешуйки. Поскольку они никуда не удаляются, они подвергаются дальнейшему облучению протонами, и структура меди, вероятнее всего, из кристаллической переходит в «аморфную». Уменьшения выхода нейтронов в реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be из-за модификации структуры меди не зарегистрировано.

3. В результате длительного облучения мишени протонами через слой лития пропущено протонов больше, чем содержится ядер лития

в области размера пучка. В данном случае при толщине лития 84 мкм и флюенсе протонов  $6,3 \cdot 10^{20}$  см<sup>-2</sup> это превышение составляет 1,62. Значительное количество водорода доставлено в приповерхностный слой меди. Этот водород в результате диффузии или через образовавшиеся трещины, как замечено ранее, доходит до лития. Если бы водород вступил в химическую связь с литием и образовал гидрид лития, то выход нейтронов упал бы на 30%. Падение выхода не зарегистрировано; это означает, что выходящий из мишени водород, доставленный пучком протонов, не вступает в химическое соединение с литием.

**10.2.2. Экспериментальные результаты. Серия II.** Во второй серии экспериментов на медный образец напылен слой лития толщиной меньше толщины, на которой генерируют нейтроны в результате пороговой реакции  ${}^{7}$ Li(p, n)<sup>7</sup>Be.

Исследуемый образец изготовлен из 99,99996 % крупнозернистой меди (Mitsubishi Materials Со., Япония). Порог образования блистеров на поверхности данного образца в 3,5 раза больше такового для образца, использованного в первой серии экспериментов. На образец напылен литиевый слой толщиной 9,6 мкм (использовано 27 мг лития). Образец облучают пучком протонов с током  $500 \pm 10$  мкА в течение 7 дней по 4–5 ч в день. Полный интеграл тока протонов составил 14,9 мА·ч.

В отличие от первой серии экспериментов, когда облучение образца пучком протонов осуществляют при энергии протонов ниже порога генерации нейтронов и кратковременно выше для определения выхода нейтронов, во второй серии экспериментов — при энергии протонов выше порога генерации нейтронов: обычно 2,04 МэВ и кратковременно для измерения выхода нейтронов при энергиях от 1,9 до 2,17 МэВ.

Во второй серии экспериментов специально используют более стойкую к блистерингу медь с тем, чтобы в первый день облучения достовернее сравнить выход нейтронов до образования блистеров и после. На рис. 10.25 представлена зависимость измеренного дозиметром № 2 выхода нейтронов, нормированного на ток протонов, от набранного интеграла тока протонов (отсутствие сигнала на графиках на рис. 10.25 и 10.26 связано с калибровкой — в эти моменты времени изменяли энергию протонов). Порог образования блистеров в данном образце меди составил 0,52 мА · ч; на рис. 10.25 он показан вертикальной линией. Видно, что никакого резкого изменения выхода нейтронов в области перехода через порог образования блистеров нет.

Временна́я зависимость дозы, измеряемая дозиметром № 2, в другие дни облучения представлена на рис. 10.26. Видно, что регистрируемый сигнал уменьшается в течение дня и уменьшается день за днем. В тече-



Рис. 10.25. Зависимость мощности дозы нейтронного излучения *D* от набранного интеграла тока протонов Ф в первый день облучения



Рис. 10.26. Временна́я зависимость сигнала, измеряемая дозиметром № 2: *1* – в течение 2-го дня облучения, *2* – 4-го дня, *3* – 5-го дня, *4* – 6-го дня

ние первых четырех дней сигнал уменьшается в среднем на 14 %, из которых 11,5 % — за счет уменьшения энергии протонов на 0,65 % из-за нагрева омического делителя (описано подробно в главе «Измерение выхода нейтронов из литиевой мишени») и 2,5 % — за счет реальной деградации выхода нейтронов.

Вероятнее всего, деградация выхода нейтронов связана с проникновением лития внутрь меди. Толщина литиевого слоя становится меньше, и выход нейтронов из него уменьшается. Дальше протоны начинают тормозиться в меди и, конечно, могут взаимодействовать с литием, проникшим внутрь меди, но энергия протонов уже может быть недостаточна для генерации нейтронов. На рис. 10.27 представлена зависимость выхода нейтронов от набранного флюенса протонов, на рис. 10.28 — временная зависимость средней скорости счета детектора нейтронов в первый и седьмой день облучения.



Рис. 10.27. Зависимость выхода нейтронов Y, измеренная дозиметром  $\mathbb{N}2$ , от набранного интеграла тока протонов  $\Phi$ 



Рис. 10.28. Временная зависимость средней скорости счета детектора нейтронов в первый (1) и седьмой день облучения (2)

Обобщая результаты проведенного исследования, можно констатировать следующее. В течение первых четырех дней облучения выход нейтронов равномерно снижался на  $2,5 \pm 1\%$  в день, в сумме за 4 дня — на  $10 \pm 1\%$  до уровня  $90 \pm 1\%$  от первоначального. В течение 5-го дня скорость деградации выхода нейтронов возросла — до  $5 \pm 1\%$  в день, в течение двух последующих дней скорость деградации еще увеличилась — до  $10 \pm 2\%$  в день. К окончанию облучения мишени (после семи дней) выход нейтронов составил  $63 \pm 3\%$  от первоначального.

Известно, что генерация нейтронов в результате реакции  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$  сопровождается накоплением в литиевом слое радиоактивного изотопа бериллий-7, испускающего  $\gamma$ -кванты энергией 478 кэВ с периодом полураспада 53 сут. Можно было ожидать, что смытие лития водой приведет к дезактивации мишени, но такого в полной мере не случилось — скорость счета данной линии излучения, измеряемая HPGe  $\gamma$ -спектрометром, снизилась до уровня 10 % от первоначальной. Вероятнее всего, литий вместе с образовавшимся бериллием проник внутрь меди и не был смыт водой.

Основные результаты экспериментов серии II представим следующим образом.

1. Появление блистеров на поверхности меди не приводит к изменению выхода нейтронов.

2. При толщине лития меньше длины пробега протона с начальной энергией до 1,882 МэВ (порога генерации нейтронов реакции  $^{7}\text{Li}(p,n)^{7}\text{Be}$ ) экспериментально зарегистрирована постоянная деградация выхода нейтронов из литиевой мишени.

3. Экспериментально установлено проникновение образующегося радиоактивного изотопа <sup>7</sup>Ве внутрь медного диска, точнее, внутрь слоя, не смываемого водой.

4. Сделано предположение, что деградация выхода нейтронов обусловлена проникновением лития внутрь меди, из-за чего протоны с энергией выше порога генерации нейтронов начинают больше тормозиться на меди и меньше взаимодействовать с литием.

**10.2.3.** Экспериментальные результаты. Серия III. В третьей серии экспериментов образец сделан из 99,99% меди (Mansfelder Kupfer und Messing GmbH, Германия). На образец напылен слой лития толщиной 68 мкм (использовано 189 мг лития). Образец облучают пучком протонов энергией 2 МэВ с током от 1 до 3 мА непрерывно в течение 4 ч.

Сначала ток пучка протонов был 1 мА. После того, как набран флюенс протонов 1,9 мА ч, измерили зависимость мощности дозы нейтронного излучения от энергии протонов. Затем ток пучка протонов увеличили до 3 мА и визуально убедились, что при такой высокой мощности нагрева (8 кВт/см<sup>2</sup>) литий под пучком протонов стал жидким, но он никуда не стекал. После набора интеграла тока протонов 8,5 мА ч зависимость мощности дозы нейтронного излучения от энергии протонов измерена повторно. На рис. 10.29 видно, что выход нейтронов упал на 36 %, хотя толщина слоя лития существенно превышала длину пробега протона с начальной энергией до порога генерации нейтронов.

После облучения мишень отсоединили от мишенного узла и смыли литий водой. Измерителем проводимости PHT-028 Multi-parameter



Рис. 10.29. Зависимость мощности дозы нейтронного излучения D от энергии протонов E для двух набранных интегралов тока протонов: 1 - 1,9 мА·ч, 2 - 8,5 мА·ч

Water Quality Monitor (Shenzhen Handsome Technology Co., Ltd., Китай) измерена проводимость воды и определено содержание в ней лития. Оно составило 171,6 мг, в то время как напыляли 189 мг. Отсюда следует, что 9,2 % лития осталось на мишени, что согласуется с предположением о возможном проникновении лития внутрь меди, высказанным при формулировании основных результатов предыдущей серии экспериментов.

Фотографии мишени с литием до и после облучения и после удаления лития представлены на рис. 10.30. Обратим внимание на хорошую однородность напыления лития (a), на отслаивание литиевого слоя по периферии после облучения (б) и на значительную эрозию меди в области пучка протонов (s).

После удаления лития образец исследован на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами. Фотография исследуемой поверхности и измеренный профиль приведены на рис. 10.31. Видно, что поверхность меди подверглась серьезной эрозии — наблюдаются кратеры диаметром до 3 мм и глубиной до 0,2 мм.

Затем из медного диска методом электроискровой резки вырезаны два образца размером  $7 \times 7 \times 8$  мм (рис. 10.32, *a*). Подготовленные образцы запрессовали в полимерную смолу на установке Buehler Simplimet 1000, отшлифовали и отполировали на автоматическом станке с постепенным уменьшением размера абразивных частиц до 3 мкм. Финишная полировка выполнена с применением коллоидного оксида кремния с размером частиц 0,05 мкм. На рис. 10.32, *б* представлена



Рис. 10.30. Фотографии мишени перед облучением (*a*), после облучения (*б*) и после смытия лития (*в*)



Рис. 10.31. Фотография поверхности меди с линией измерения профиля (*a*) и измеренный профиль (*б*)



Рис. 10.32. Фотография подложки нейтроногенерирующей мишени, разрезанной для подготовки образцов; стрелки указывают на грани образцов, которые впоследствии были подвергнуты шлифовке, и при исследовании на микроскопе именно эти грани лежали в плоскости наблюдения (*a*); фотография образцов в полимерной форме, ориентированных шлифованной гранью по направлению к наблюдателю (*б*). Цифры на рисунке (*a*) соответствуют цифрам на рисунке (*б*)

фотография образцов в полимерной форме, подготовленных для исследования на микроскопе.

Наблюдение за микроструктурой образцов проведено на растровом электронном микроскопе EVO 50 XVP (Zeiss, Германия) в двух режимах: 1) SE, в котором изображение получают путем выбивания из образцов вторичных электронов, данный режим позволяет получить информацию о рельефе; 2) BSD, в котором изображение получают с помощью обратно отраженных электронов, данный режим позволяет выявить различие в составе исследуемого образца — области с преимущественным содержанием более легких элементов на изображении будут темнее, чем области с более тяжелыми элементами. Для изучения элементного состава методом рентгеноспектрального анализа использован детектор х-ACT SDD (Oxford Instruments, Великобритания). Образцы облучают пучком электронов с энергией 20 кэВ и с током порядка несколько пикоампер.

Из множества полученных изображений выберем два. На рис. 10.33 представлено характерное изображение микростыка двух образцов. По центру изображений проходит линия раздела образцов. Протонный пучок падает на поверхности от линии стыка в сторону каждого образца, исследование проводится для области, перпендикулярной направлению протонного пучка. На рис. 10.33 (вверху) приведен



Рис. 10.33. Изображение области стыка образцов. Нумерация образцов 1, 2 соответствует нумерации на рис. 10.32

общий вид стыка, рис. 10.33 (внизу) — область стыка приближена. Отчетливо видно, что от поверхности вглубь образца образовался слой, который выглядит темнее, чем основной материал образца. Толщина слоя составила порядка 35 мкм на каждый образец. Поскольку глубина проникновения протонов в медь составляет 7 мкм, можно утверждать, что модификации подвергается поверхность меди толщиной больше пробега протона.

На рис. 10.34 представлено изображение области максимальной эрозии. Особенности этого изображения в том, что i) на нем виден только однин образец, поскольку между образцами в этом месте было свободное пространство, ii) виден не только срез, но и поверхность, подвергнутая облучению протонами, но не подвергнутая никакой обработке, включая шлифование. Этот слой толщиной порядка 15 мкм виден на рис. 10.33, *а* в виде чешуек между светлым изображением





Рис. 10.34. Изображение области максимальной эрозии

обработанного среза образца и темным изображением свободного пространства. После снятия этого изображения образец был подвергнут травлению 50%-м раствором азотной кислоты и повторному наблюдению этой же области. На рис. 10.34, *б* видно, что этот слой чешуек после травления пропал. Вероятнее всего, на рис. 10.34, *а* удалось получить изображение слоев меди (чешуек), отделившихся от медного образца в результате образования блистеров и перемещавшихся с литием, проникающим внутрь меди.

Рентгеноспектральный анализ элементного состава различных слоев образцов позволил определить содержание меди, кислорода и углерода в различных слоях образцов, но не позволил идентифицировать литий, поскольку его характеристическое излучение имеет величину 40 эВ и приходится на область низких энергий, достоверно не регистрируемых детектором. В области толщиной порядка 35 мкм, подвергнутой модификации, весовое содержание меди составляет от 92 до 94 %, углерода — от 3 до 5 %, кислорода — от 1,5 до 2 %, кремния — от 0,4 до 0,6 %. Наличие кремния и углерода объясняется особенностями обработки образцов. В области, не подвергнутой модификации, весовое содержание меди составляет от 95,5 до 96 %, углерода — от 2,2 до 2,4 %, кислорода — от 1,4 до 1,5 %, кремния — от 0,5 до 0,6 %. Достоверно можно утверждать только то, что подвергнутый модификации слой меди более пористый, чем не подвергнутый модификации.

Основные результаты экспериментов серии III представим следующим образом.

1. При высокой плотности мощности пучка протонов литий, нанесенный на медь, становится жидким, но не стекает.

2. Несмотря на то, что толщина лития больше длины пробега протона с начальной энергией до порога генерации нейтронов, по мере облучения наблюдается деградация выхода нейтронов.

3. Интенсивное облучение протонами приводит к значительной эрозии меди и, возможно, к проникновению лития глубже места остановки протонов. Интенсивное взаимодействие меди с литием отмечено в диссертации Адама Броуна [256].

4. Получено изображение слоя, вероятнее всего, состоящего из лития и чешуек меди, отделившихся от медного образца в результате образования блистеров. Этот слой не был смыт водой, но был удален травлением.

**10.2.4. Экспериментальные результаты. Серия IV.** Целью четвертой серии экспериментов было выяснить, проникает ли литий в медь при напылении или при облучении протонами до появления блистеров, или только при облучении протонами после появления блистеров.

Эксперимент проводят в несколько другой геометрии, чтобы уменьшить плотность тока пучка протонов и иметь возможность облучать мишень в течение заметного времени до момента появления блистеров. Мишень, изготовленную из меди чистотой 99,996 %, размещают в вертикальной части тракта транспортировки пучка протонов после поворотного магнита и магнитного сканера — в месте ее обычного размещения при проведении биологических исследований. При таком размещении мишени дозиметр № 2 оказался на расстоянии 6,4 м от мишени под углом 136° к направлению пучка протонов. Мишень облучают пучком протонов диаметром 4 см, током 1 мА, энергией от 1,85 до 2,25 МэВ в течение 40 минут. При набранном интеграле тока 0,66 мА · ч и диаметре пучка 4 см максимальный флюенс протонов составил  $1,15\cdot 10^{18}~{\rm сm}^{-2},$  что почти в 4 раза меньше порога образования блистеров.

Сначала облучают две аналогичные мишени с толщиной слоя лития 1 мкм с той лишь разницей, что у второй мишени слой лития перед облучением был смыт водой. На рис. 10.35 представлена зависимость мощности дозы, измеряемой дозиметром, от энергии протонов при облучении этих двух образцов; при этом регистрируемый сигнал от мишени со смытым литием увеличен в 500 раз для удобства сравнения. Видно, что выход нейтронов с мишени, с поверхности которой водой был смыт литий, в 700 раз меньше. Этот факт указывает на то, что при напылении лития на медный диск, охлаждаемый воздухом, не происходит заметного проникновения лития в медь. Стоит обратить внимание на рис. 10.30, б, на котором видно, что после облучения мишени литиевый слой на периферии отделился от медной подложки, что указывает на слабую адгезию лития с медью.



Рис. 10.35. Зависимость мощности дозы нейтронного излучения D от энергии протонов при облучении мишени с литиевым слоем толщиной 1 мкм (1 — ромбы) и мишени с предварительно смытым слоем лития (2 — кружки; значения умножены на 500). Для справки приведена зависимость сечения реакции  $^{7}$ Li(p, n)<sup>7</sup>Be от энергии протонов (3 — сплошная линия)

Затем облучают мишень с литиевым слоем толщиной 10 мкм. После облучения мишень снимают и помещают в разработанный  $\gamma$ -спектрометрический комплекс, состоящий из HPGe  $\gamma$ -спектрометра, свинцового коллиматора толщиной 50 мм с отверстием 2,5 мм и 2D подвижного управляемого стола. На рис. 10.36 представлен скриншот программы управления с результатом измерения. Видно, что из области размером 40 мм испускаются  $\gamma$ -кванты энергией 478 кэВ в результате распада атомных ядер <sup>7</sup>Ве, образовавшихся в реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be.


Рис. 10.36. Скриншот программы управления γ-спектрометрического комплекса с результатом измерения пространственного распределения интенсивности излучения γ-квантов энергией 478 кэВ; шаг измерений составил 2 мм, время измерения одной точки — 5 с

Эта область совпадает с расположением и размером пучка протонов на мишени.

Затем литий смыт водой, и двумя методиками установлено, что треть лития осталась в меди. Измерение проводимости воды, которой смыт литий, указывает на то, что в ней содержится 22 мг лития, в то время как напылили 30 мг. Дозиметр регистрировал мощность дозы  $\gamma$ -излучения мишени, обусловленного накоплением радиоактивного изотопа <sup>7</sup>Ве, после смытия лития водой (40 мкЗв/ч), в то время как до смытия — 120 мкЗв/ч. Этот результат указывает на то, что 3 мкм лития проникли внутрь меди.

Проникновение лития в медь подтверждено также следующим образом. После облучения протонами мишень с толщиной слоя лития 30 мкм была снята с установки, и ее активация сразу измерена HPGe  $\gamma$ -спектрометра. В спектре излучения зарегистрированы две яркие линии: с энергией 478 кэВ из-за распада образовавшихся ядер <sup>7</sup>Ве с периодом полураспада 53 дня и с энергией 511 кэВ из-за активации меди нейтронами (период полураспада атомного ядра <sup>64</sup>Си равен 12 ч). После удаления лития водой интенсивность линии 478 кэВ уменьшилась в 12 раз (с 420 до 34 с<sup>-1</sup>), в то время как интенсивность линии 511 кэВ осталась прежней (41 с<sup>-1</sup>).

Таким образом, в результате проведения четвертой серии экспериментов установлено, что литий не проникает в медь при напылении, но проникает при облучении протонами до появления блистеров на поверхности меди, вероятнее всего, от нагрева.

### 10.3. Выводы

В результате исследования радиационного блистеринга меди с тонким слоем лития установлено следующее.

1. Облучение протонами с энергией 2 МэВ мишени, выполненной в виде медного диска, на который нанесен тонкий слой лития, как и следовало ожидать, приводит к появлению блистеров на поверхности меди. Флюенс появления блистеров и их размеры соответствуют параметрам предыдущих исследований образования блистеров на поверхности меди без лития. Блистеры на поверхности меди проявляются сквозь слой лития в виде возвышений. Их появление на поверхности меди не приводит к изменению выхода нейтронов.

2. Дальнейшее облучение мишени протонами приводит к постепенному исчезновению блистеров в области интенсивного облучения. Какой-либо эрозии меди или удаления поверхностного слоя меди не обнаружено, что обусловлено наличием тонкого слоя лития, удерживающего неизбежно возникающие медные чешуйки. Поскольку они никуда не удаляются, они подвергаются дальнейшему облучению протонами, и структура меди из кристаллической переходит в «аморфную». Уменьшения выхода нейтронов в реакции <sup>7</sup>Li(p,n)<sup>7</sup>Be из-за модификации структуры меди не зарегистрировано.

3. Водород, доставленный пучком протонов в приповерхностный слой меди, не вступает в химическое соединение с литием, что могло бы приводить к падению выхода нейтронов.

Полученные результаты изменяют сложившееся представление о влиянии блистеринга. Впервые установлено, что радиационный блистеринг на поверхности меди литиевой мишени не приводит к деградации выхода нейтронов, т. е. не делает мишень непригодной к эксплуатации, не ограничивает время ее эксплуатации. Деградация выхода нейтронов возможна из-за диффузии лития в медь и может быть исключена напылением литиевого слоя толщиной, большей длины пробега протонов с начальной энергии до порога генерации нейтронов.

Полученные знания позволяют сделать предположение о взаимодействии пучка протонов с литиевой мишенью. Как только литиевую мишень облучают пучком протонов, литий начинает диффундировать в медь, улучшая адгезию лития к меди. При достижении определенного флюенса протонов на поверхности меди появляются блистеры в виде возвышений с полостью внутри. Появление блистеров не приводит к перегреву лития и его испарению <sup>1</sup>). Всплывание блистеров сопровождается появлением трещин, через которые водород, доставляемый пучком протонов, выходит наружу, а внутрь блистера поступает литий. Полость блистеров заполняется литием, и формируется промежуточный слой литий-медь. Протоны начинают поглощаться в этом слое, разрушая кристаллическую структуру материала и переводя его в аморфное состояние. Существенного распыления этого слоя нет, поскольку он удерживается слоем лития. Со временем в этом промежуточном слое перестают появляться блистеры, и такая мишень способна эффективно генерировать нейтроны длительное время. На технологию изготовления материала, в котором не образуются блистеры, получен патент США [135].

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>) При номинальной плотности мощности пучка протонов 300 Вт/см<sup>2</sup> [117] на h = 20 мкм меди перепад температуры за счет теплопроводности будет 0,15 °С. При всплывании блистера диаметром r = 500 мкм, толщиной h = 20 мкм тепло будет идти по большему, чем 20 мкм, пути порядка (r + h)/2 = 35 мкм, т.е. в 1,75 раз бо́льшему. Сечение же с  $\pi r^2$  изменится на  $\pi rh$ , т.е. уменьшится в r/h = 2,5 раз. В итоге температура поверхности блистера возрастает на величину  $\Delta T = 0,15 \cdot (1,75 \cdot 2,51) = 0,6$  °С. Такой кратковременный прирост температуры на 0,6 °С не приводит к испарению лития.

### Глава 11

# ВНЕДРЕНИЕ УСКОРИТЕЛЬНОГО ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ VITA В ОНКОЛОГИЧЕСКИЕ КЛИНИКИ

1 марта 2016 г. в Нанкине (Китай) с руководителем компании Neuboron Medtex Ltd., Китай и представителем компании Tri Alpha Energy (сейчас TAE Technologies), США достигнута договоренность о создании ускорительного источника нейтронов VITA и оснащении им клиники в Китае. Через 6 лет 7 месяцев 8 дней в созданном центре пролечили первого пациента — он стал первым пациентом в Китае, пролеченным методикой БНЗТ с применением ускорительного источника нейтронов. Китай стал второй страной в мире, внедрившей ускорительную концепцию БНЗТ в клиническую практику. Этот факт китайские коллеги считают важной вехой в истории Китая [257].

Для реализации этого проекта Институтом ядерной физики СО РАН и созданной дочерней компанией ТАЕ Life Sciences разработана модифицированная версия ускорительного источника нейтронов VITA, в которую внесено три изменения.

Во-первых, для получения пучка протонов с энергией 2,5 МэВ немного увеличено расстояние между ускоряющими электродами и добавлено предускорение на 150 кВ.

Во-вторых, в качестве инжектора отрицательных ионов водорода использован не источник ИЯФ СО РАН, а источник компании D-Pace (Канада).

В-третьих, для уменьшения высоты установки и для задания потенциалов не от резистивного делителя, а от соответствующих секций секционированного выпрямителя ЭЛВ [103] последний был перевернут и надвинут на нижнюю часть проходного изолятора. Это техническое решение было ранее проверено [96].

Сборка источника нейтронов началась в 2018 г. на площадке ИЯФ СО РАН; в конце 2019 г. на установке получены проектные параметры; в сентябре 2020 г. установка пятью фурами отправлена в Китай. На рис. 11.1 представлена фотография установки на площадке в ИЯФ СО АН.

За это время в г. Сямынь построено здание, в котором разместился The Xiamen Humanity Hospital BNCT Center. После поступления



Рис. 11.1. Ускорительный источнк нейтронов VITA на площадке ИЯФ СО РАН перед отправкой в Китай

установки она введена в эксплуатацию, первый пучок получен 5 августа 2021 г., затем на ней проведены исследования с клеточными культурами и лабораторными животными, а с 9 октября 2022 г. в центре приступили к лечению больных.

В настоящее время компания TAE Life Sciences изготавливает ускорительный источник нейтронов VITA для Национального центра адронной терапии в области онкологии в Павии, Италия, а Институт ядерной физики СО РАН — для Национального медицинского исследовательского центра им. Н.Н. Блохина в Москве.

Предварительное решение о внедрении методики БНЗТ в клиническую практику в Российской Федерации достигнуто на встрече с Министром здравоохранения РФ М.А. Мурашко и Министром науки и высшего образования РФ В.Н. Фальковым 4 марта 2021 г. На следующий день Председателем Правительства РФ М.В. Мишустиным принято окончательное решение.

В настоящее время значительное число организаций (преимущественно, клиники при университетах) проявляют интерес к приобретению ускорительного источника нейтронов VITA. Для удовлетворения спроса следует наладить на территории Российской Федерации их производство.

### Глава 12

## ЛИТИЙ-НЕЙТРОНОЗАХВАТНАЯ ТЕРАПИЯ

### Н.П. Бгатова, А.И. Касатова, Ю.С. Таскаева, С.Ю. Таскаев

Более перспективной методикой нейтрон-захватной терапии может стать литий-нейтронозахватная (ЛиНЗТ), привносящая новое качество — 100 %-е выделение энергии ядерной реакции в клетках опухоли вместо 84 % в БНЗТ.

В реакции <sup>10</sup>В( $n, \alpha$ )<sup>7</sup>Li испускаются  $\alpha$ -частица и атомное ядро лития-7. В 94% случаев литий испускается в возбужденном состоянии и возбуждение снимается излучением фотона с энергией 478 кэВ. Атомное ядро литий-7 и  $\alpha$ -частица характеризуются высоким темпом торможения, и они выдяляют энергию в пределах клетки опухоли. Фотон характеризуется низким темпом торможения и выделяет энергию в существенно большем размере. Таким образом, энергетический баланс этой реакции такой, что в среднем из 2,79 МэВ энергии ядерной реакции 2,34 МэВ выделяется в клетках опухоли и 0,45 МэВ выделяется в окружающей ткани. В реакции <sup>6</sup>Li( $n, \alpha$ )<sup>3</sup>H излучаются только частицы с высоким темпом торможения: атомное ядро трития энергией 2,734 МэВ, которое в ткани организма тормозится на длине 26 мкм, и  $\alpha$ -частица энергией 2,051 МэВ, которая тормозится в клетках опухоли, содержащих литий.

Природный литий состоит из двух стабильных изотопов: <sup>6</sup>Li (7,5%) и <sup>7</sup>Li (92,5%). Для терапии следует использовать литий, обогащенный изотопом литий-6. Если <sup>6</sup>Li характеризуется большим сечением захвата тепловых нейтронов (940 б), то <sup>7</sup>Li характеризуется очень малым сечением захвата нейтронов (45 мб). Захват нейтрона литием-7 приводит к появлению изотопа литий-8, который почти мгновенно превращается в бериллий-8 в результате бета-минус-распада. Последний также практически мгновенно распадается на две  $\alpha$ -частицы с энергией по 8,67 МэВ. Поэтому захват нейтрона литием-7, как и литием-6, обеспечивает локальное 100% энерговыделение, даже в 3,6 раза большее. Однако литий-7 в 5700 раз менее эффективен для терапии, чем

литий-6, поскольку сечение захвата нейтрона в 20 900 раз меньше. Так как присутствие лития-7 не приводит к негативным последствиям, обогащение лития по изотопу лития-6 не обязательно должно быть запредельно высоким и девяностопроцентное обогащение представляется вполне достаточным.

Обратим внимание на то, что один из продуктов реакции, тритий, является радиоактивным. Тритий имеет период полураспада 12,32 года. При распаде трития выделяется 18,6 кэВ энергии, из них 5,7 кэВ в виде кинетической энергии электрона, а оставшаяся энергия уносится почти не обнаруживаемым электронным антинейтрино. Поскольку энергия электрона почти на три порядка по величине меньше энергии реакции  ${}^{6}\text{Li}(n, \alpha){}^{3}\text{H}$ , то накопление трития не должно представлять радиационной опасности.

Хотя данные факты хорошо известны, исследований по ЛиНЗТ не проводили. Помимо статьи 1936 г., в которой описана идея нейтронзахватной терапии [6], на возможность использования лития призывалось еще в двух ранних статьях [258, 259] и в одной недавней [260]. Возможно, развитие ЛиНЗТ сдерживало предположение о высокой токсичности лития и нежелание или боязнь использовать изотоп лития, обогащаемый для ядерного оружия.

В БНЗТ принято считать, что для ее реализации минимальная концентрация бора-10 в клетках опухоли дожна быть 10 ppm — в этом случае полезная борная доза равна сумме всех остальных трех компонент доз. Для ЛиНЗТ минимальная концентрация лития-6 в клетках опухоли должна быть в два раза больше — 20 ppm. Дело в том, что сечение поглощения теплового нейтрона атомным ядром <sup>6</sup>Li в 4 раза меньше сечения поглощения теплового нейтрона атомным ядром <sup>10</sup>В (940 б вместо 3835 б), но выделение энергии ядерной реакции в клетках опухоли в 2 раза больше (4,785 МэВ вместо 2,34 МэВ).

Соли лития активно применяют в клинической практике более 60 лет для лечения пациентов с психиатрическими заболеваниями [261–263]. Наибольшую распространенность получили такие соединения, как карбонат лития, цитрат лития, хлорид лития, сульфат лития и некоторые другие [264]. Литий обладает низким терапевтическим индексом, что увеличивает риск развития его токсических эффектов [265].

Нами сначала проведена оценка цитотоксичности различных солей лития, не обогащенных изотопом <sup>6</sup>Li. Полученные результаты показали, что карбонат, цитрат и хлорид лития в концентрации лития 40 мкг/мл не токсичны как для опухолевых, так и для нормальных клеток. Достоверные отличия в выживаемости клеток, инкубированных с солями лития от контрольных групп, наблюдались при использовании лития в концентрации 160 мкг/мл и более, что свидетельствует о возможности использования всех трех солей лития в концентрациях, минимально требуемых для успешной реализации ЛиНЗТ.

Поскольку накопление препаратов бора в опухоли является одним из важнейших условий для БНЗТ, также проведен анализ накопления лития в опухолевых и нормальных клетках. Полученные данные показали гетерогенное накопление лития *in vitro* при использовании карбоната, цитрата и хлорида лития (рис. 12.1). Наибольшие значения поглощения получены на клетках меланомы кожи мыши В16 при инкубации с карбонатом лития — 0,8 мкг/10<sup>6</sup> клеток. Клетки меланомы человека SK-Mel-28 помимо карбоната лития также эффективно поглощают цитрат лития — по 0,47 мкг/10<sup>6</sup> клеток. Нормальные фибробласты человека также достаточно хорошо накапливали карбонат лития, при этом содержание цитрата и хлорида лития было в 2 раза ниже. Таким образом, данные результаты демонстрируют значительно более высокое поглощение опухолевыми клетками лития в сравнении с препаратами бора, используемых в клинических исследованиях [266, 267].



Рис. 12.1. Оценка накопления лития в клетках BJ-5ta (*a*), SK-Mel-28 (*б*) и B16 (*в*) через 24 часа инкубации с солями лития. Данные представлены как среднее ± стандартное отклонение (*n* = 3). ЛК — карбонат лития, ЛЦ — цитрат лития, ЛХ — хлорид лития

Поскольку наибольшая эффективность накопления лития была достигнута при инкубации клеток с карбонатом лития (ЛК), эта соль была использована для дальнейшего исследования *in vivo*.

Анализ биораспределения лития и его потенциальной нефротоксичности был проведен на мышиной модели C57BL/6 с имплантированной подкожно клеточной линией меланомы кожи B16. На рис. 12.2 представлены результаты анализа накопления лития в опухоли, коже, крови, почках и головном мозге через 15, 30, 90 и 180 мин и 7 сут после однократного введения карбоната лития в дозе 300 мг/кг (ЛК-300) и 400 мг/кг (ЛК-400), полученные с помощью атомно-эмиссионной спектрометрии с индуктивно связанной плазмой. Максимальная кон-



Рис. 12.2. Результаты исследования биораспределения лития в опухоли, коже, крови, почках и головном мозге в динамике после однократного введения карбоната лития в дозе 300 мг/кг (ЛК-300) (А, В) и 400 мг/кг *per оз* мышам линии C57BL/6 с имплантированной подкожно клеточной линией меланомы кожи В16. Данные представлены как среднее ± стандартное отклонение, n = 5

центрация лития в опухоли обнаружена через 30 мин после однократного введения карбонат лития *per os* в дозе 400 мг/кг и составила 22,4 мкг/г, что в 2 раза превосходит концентрацию лития в крови и в 1,5 раза в коже. Наибольшие накопление лития обнаружено в пробах почки (до 43 мкг/г). Содержание лития в головном мозге было низким в течение всего времени проведения эксперимента и не превышало 4,1 мкг/г. Концентрация лития во всех органах и тканях снизилась до фоновых значений через 7 сут после однократного введения карбоната лития, что говорит о полной элиминации лития из организма животных.

Выведение лития осуществляется преимущественно почками; в соответствии с этим одним из наиболее распространенных побочных эффектов при терапии литием является так называемая литий-индуцированная нефропатия [268]. По данным трансмиссионной электронной микроскопии (рис. 12.3), однократные введения карбоната лития в дозах 300 и 400 мг/кг не приводили к значительному изменению структуры почечного фильтра. В результате морфологического исследования компонентов фильтрационного барьера почки, а также оценки результатов ШИК-реакции в почечных канальцах можно сделать вывод, что однократное введение карбоната лития в дозах 300 и 400 мг/кг не приводит к острому повреждению почек.



Рис. 12.3. Структура почки. Трансмиссионная электронная микроскопия. Ультраструктура почечного фильтра (а). Гломерулярная базальная мембрана (звездочки); ножки подоцитов (черные стрелки); фенестры эндотелиоцитов гломерулярных капилляров (серые стрелки). Ультраструктура проксимального канальца (б). Базальные мембраны эпителиоцитов проксимальных канальцев (звездочки)

Таким образом, в результате проведенного исследования установлено, что литий можно накопить в клетках опухоли в концентрации, достаточной для проведения терапии, и с такой однократной инъекцией лития справляются почки. Детали исследования, открывающие эру литий-нейтронозахватной терапии, изложены в статье [269].

### Заключение

Для развития бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей разработан ускорительный источник нейтронов VITA, состоящий из линейного электростатического тандемного ускорителя заряженых частиц оригинальной конструкции (ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией) для получения стационарного пучка протонов энергией до 2,3 МэВ и током до 10 мА, тонкой литиевой мишени для длительной стабильной генерации нейтронов в реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Ве и системы формирования пучка нейтронов, включающей в себя замедлитель, отражатель и поглотитель, для формирования терапевтического пучка нейтронов эпитеплового диапазона энергий, удовлетворяющего требованиям БНЗТ.

Ускорительный источник нейтронов VITA применяют для отработки методики БНЗТ на клеточных культурах и лабораторных животных, для разработки средств и методов дозиметрии, для измерения выхода частиц и сечений ядерных реакций, для тестирования новых препаратов адресной доставки бора, для лечения домашних животных со спонтанными опухолями и для лечения больных злокачественными опухолями. Установку также применяют для развития литий-нейтронозахватной терапии, для радиационного тестирования и модифицирования перспективных материалов и для других приложений.

Ускорительный источник нейтронов VITA обеспечивает:

- получение мощного стационарного монохроматического пучка протонов или дейтронов с энергией, изменяемой в диапазоне от 0,3 до 2,3 МэВ, с током, изменяемым от 0,5 до 10 мА. Пучок ионов отличает высокая монохроматичность и стабильность энергии (0,1%), высокая стабильность тока (до 0,4%). На выходе из ускорителя пучок ионов имеет диаметр 10±1 мм, угловую расходимость ±1,5 мрад, нормализованный геометрический эмиттанс ε<sub>norm</sub> = 0,2 мм ⋅ мрад;
- генерацию мощного потока нейтронов (до 2 · 10<sup>12</sup> c<sup>-1</sup>) и формирование пучка нейтронов различного энергетического диапазона: холодных, тепловых, эпитепловых, исключительно эпитепловых, моноэнергетичных, над-эпитепловых или быстрых;
- генерацию моноэнергетических фотонов с энергией 478 кэВ, 511 кэВ или 9,17 МэВ;
- получение α-частиц и позитронов.

Исследования преимущественно выполнены за счет средств грантов Российского научного фонда № 14-32-00006 (2014–2018) и № 19-72-30005 (2019–2025).

#### Список литературы

- Bayanov B.F., Belov V.P., Bender E.D., Bokhovko M.V., Dimov G.I., Kononov V.N., Kononov O.E., Kuksanov N.K., Palchikov V.E., Pivovarov V.A., Salimov R.A., Silvestrov G.I., Skrinsky A.N., Taskaev S.Yu. Accelerator based neutron source for the neutron-capture and fast neutron therapy at hospital (Physical project). Препринт ИЯФ СО РАН. № 89. Новосибирск, 1997. 62 с.
- Bayanov B.F., Belov V.P., Bender E.D., Bokhovko M.V., Dimov G.I., Kononov V.N., Kononov O.E., Kuksanov N.K., Palchikov V.E., Pivovarov V.A., Salimov R.A., Silvestrov G.I., Skrinsky A.N., and Taskaev S.Yu. Accelerator based neutron source for the neutron-capture and fast neutron therapy at hospital // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A. 1998. V.413, № 2-3. P. 397-426.
- Neutron Capture Therapy. Principles and Applications / Ed. by: W. Sauerwein, A. Wittig, R. Moss, Y. Nakagawa. Springer, 2012. 553 p.
- 4. Таскаев С.Ю., Каныгин В.В. Бор-нейтронозахватная терапия. Новосибирск: изд-во СО РАН, 2016. 216 с.
- Ahmed M., Alberti D., Altieri S., ..., Taskaev S., ..., Tsuchida K. Advances in Boron Neutron Capture Therapy. Intern. At. Energy Agency, Vienna, Austria. June 2023. 416 p.
- 6. Locher G.L. Biological effects and therapeutic possibilities of neutrons // Am. J. Roentgenol. Radium Ther. 1936. V. 36, № 1. P. 1–13.
- Chadwick J. The existence of a neutron // Proc. R. Soc. London. 1932. V. A136. P. 692–708.
- Taylor H.J., Goldhaber M. Detection of nuclear disintegration in a photographic emulsion // Nature (London). 1935. V. 135. P. 341–348.
- Sheino I., Khokhlov V., Kulakov V., Zaitsev K. Estimation of neutron kerma in biological tissue containing boron and gadolinium compounds for neutron capture therapy // Proc. Intern. Symp. on Boron Neutron Capture Therapy / S. Taskaev (ed.), July 7–9, 2004, Novosibirsk, Russia. 2004. P. 99–110.
- Matsumoto T. Transport calculations of depth-dose distributions for gadolinium neutron capture therapy // Phys. Med. Biol. 1992. V. 37. P. 155–162.
- Khokhlov V., Yashkin P., Silin D., Djorova E., Lawaczeck R. Neutron capture therapy with gadopentetate dimeglumine: experiments on tumorbearing rats // Acad. Radiol. 1995. V.2, № 5. P. 392–398.
- Takahashi K., Nakamura H., Furumoto S., Yamamoto K., Fukuda H., Matsumura A., Yamamoto Y. Synthesis and in vivo biodistribution of BPA-Gd-DTPA complex as a potential MRI contrast carrier for neutron capture therapy // Bioorg. Med. Chem. 2005. V. 13, № 3. P.735–743.
- Stalpers L., Stecher-Rasmussen F., Kok T., Boes J, van Vliet-Vroegindeweij C., Slotman B., Haveman J. Radiobiology of gadolinium neutron capture therapy // Research and development in neutron capture therapy /

W. Sauerwein, R. Moss, A. Wittig (eds.). Monduzzi Editore, Bologna. 2002. P. 825-830.

- Cerullo N., Bufalino D., Daquino G. Progress in the use of gadolinium for NCT // Appl. Radiat. Isot. 2009. V. 67, Iss. 7–9. P. S157–S160.
- Zaitsev K., Portnov A., Sakharov V., Troshin V., Savkin V., Kvasov V., Mishcherina O., Kulakov V., Khokhlov V., Sheino I., Meshcherikova V., Mitin V., Kozlovskaya N., Shikunova I. NCT at the MEPhI reactor // Proc. Intern. Symposium on Boron Neutron Capture Therapy / S. Taskaev (ed.). July 7–9, 2004, Novosibirsk, Russia. 2004. P. 82–98.
- Kruger P. Some biological effects of nuclear disintegration products on neoplastic tissue // Proc. Natl. Acad. Sci. USA. 1940. V. 26. P. 181–192.
- 17. Sweet W. The uses of nuclear disintegration in the diagnosis and treatment of brain tumor // Nucl. Engl. J. Med. 1951. V. 245. P. 875–878.
- Sweet W., Javid M. The possible use of slow neutrons plus boron-10 in the therapy of intracranial tumors // Trans. Am. Neurol. Assoc. 1951. V. 76. P. 60–63.
- Farr L., Sweet W., Robertson J., Foster C., Locksley H., Sutherland D., Mendelsohn M., Stickley E. Neutron capture therapy with boron in the treatment of glioblastoma multiforme // Am. J. Roeng. Ther. Nucl. Med. 1954. V.71. P.279–293.
- Goldwin J., Farr L., Sweet W., Robertson J. Pathology study of eight patients with glioblastoma multiforme treated by neutron capture therapy using boron 10 // Cancer. 1955. V.8. P. 601–615.
- Slatkin D. A history of boron neutron capture therapy of brain tumours // Brain. 1991. V. 114. P. 1609–1629.
- 22. Sauerwein W. Principles and history of neutron capture therapy // Strahlenther Onkol. 1993. V. 169, № 1. P. 1-6.
- Soloway A., Hatanaka H., Davis M. Penetration of brain and brain tumor. VII. Tumor binding sulfhydryl boron compounds // J. Med. Chem. 1967. V. 10. P. 714-717.
- Hatanaka H. Clinical results of boron neutron capture therapy // Basic Life Sci. 1990. V. 54, № 15. P. 15–21.
- 25. Mishima Y., Ichihashi M., Hatta S., Honda C., Sasase A., Yamamura K., Kanda K., Kobayashi T., Fukuda H. Selective thermal neutron capture therapy and diagnosis of malignant melanoma: from basic studies to first clinical treatment // Basic Life Sci. 1989. V. 50. P. 251–260.
- 26. Chanana A., Capala J., Chadha M., Coderre J., Diaz A., Elowitz E., Iwai J., Joel D., Liu H., Ma R., Pendzick N., Peress N., Shady M., Slatkin D., Tyson G., Wielopolski L. Boron neutron capture therapy for glioblastoma multiforme: interim results from the phase I/II dose-escalation studies // Neurosurgery. 1999. V. 44, № 6. P. 1182–1193.
- 27. Busse P., Harling O., Palmer M., Kiger W. 3rd, Kaplan J., Kaplan I., Chuang C., Goorley J., Riley K., Newton T., Santa Cruz G., Lu X., Zamenhof R. A critical examination of the results from the Harvard-MIT NCT program phase I clinical trials of neutron capture therapy for intracranial disease // J. Neuro-Oncol. 2003. V. 62, № 1–2. P. 111–121.

- Sauerwein W., Zurlo A. The EORTC boron neutron capture therapy (BNCT) group: achievements and future projects // Eur. J. Cancer. 2002. V.38, Suppl. 4. P. S31–S34.
- Joensuu H., Kankaanranta L., Seppala T., Auterinen I., Kalio M., Kulvik M., Laakso J., Vahatalo J., Kortesniemi M., Kotiluoto P., Seren T., Karila J., Brander A., Jarviluoma E., Ryynanen P., Pauteu A., Ruokonen I., Minn H., Tenhunen M., Jaaskelainen J., Farkkila M., Savolainen S. Boron neutron capture therapy of brain tumors: clinical trials at the finish facility using boronophenylalanine // J. Neuro-Oncol. 2003. V.62, № 1–2. P. 123–134.
- 30. Capala J., Stenstam B., Sköld K., Munck af Rosenschöld P., Giusti V., Persson C., Wallin E., Brun A., Franzen L., Carlsson J., Salford L., Ceberg C., Persson B., Pellettieri L., Henriksson R. Boron neutron capture therapy for glioblastoma multiforme: clinical studies in Sweden // J. Neuro-Oncol. 2003. V. 62, № 1–2. P. 135–144.
- Marek M., Burian J., Rataj J., Polák J., Spurny F. Reactor based epithermal neutron beam enhancement at Rež // Radiat. Prot. Dosimetry. 1997. V. 70. P. 567–570.
- 32. Dbaly V., Tovarys F., Honova H., Petruzelka L., Prokes K., Burian J., Marek M., Honzatko J., Tomandl I., Kriz O., Janku I., Mares V. Contemporary state of neutron capture therapy in Czech Republic (part 2) // Čes. a slov. Neurol. Neurochir. 2002. V. 66/99, № 1. P. 60–63.
- Nakagawa Y., Pooh K., Kobayashi T., Kageji T., Uyama S., Matsumura A., Kumada H. Clinical review of the Japanese experience with boron neutron capture therapy and proposed strategy using epithermal neutron beams // J. Neuro-Oncol. 2003. V.62, № 1–2. P.87–99.
- 34. González S., Bonomi M., Santa Cruz G., Blaumann H., Calzetta Larrieu O., Menéndez P., Jiménez Rebagliati R., Longhino J., Feld D., Dagrosa M., Argerich C., Castiglia S., Batistoni D., Liberman S., Roth B. First BNCT treatment of a skin melanoma in Argentina: dosimetric analysis and clinical outcome // Appl. Radiat. Isot. 2004. V. 61, № 5. P. 1101–1105.
- 35. Liu Y.-W., Huang T., Jiang S., Liu H. Renovation of epithermal neutron beam for BNCT at THOR // Appl. Radiat. Isot. 2004. V.61, № 5. P. 1039-1043.
- 36. Kato I., Ono K., Sakurai Y., Ohmae M., Maruhashi A., Imahori Y., Kirihata M., Nakazawa M., Yura Y. Effectivenes of BNCT for recurrent head and neck malignancies // Appl. Radiat. Isot. 2004. V. 61, № 5. P. 1069–1073.
- 37. Kankaanranta L., Seppala T., Koivunoro H., Saarilahti K., Atula T., Collan J., Salli E., Kortesniemi M., Uusi-Simola J., Makitie A., Seppanen M., Minn H., Kotiluoto P., Auterinen I., Savolainen S., Kouri M., Joensuu H. Boron Neutron capture therapy in the treatment of locally recurred head and neck cancer // Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 2007. V.69, №2. P.475–482.
- 38. Tamura Y., Miyatake S., Nonoguchi N., Miyata S., Yokoyama K., Doi A., Kuroiwa T., Asada M., Tanabe H., Ono K. Boron neutron capture thera-

py for recurrent malignant melanoma. Case report // J. Neurosurg. 2006. V. 105, № 6. P. 898–903.

- 39. Suzuki M., Endo K., Satoh H., Sakurai Y., Kumada H., Kimura H., Masunaga S., Kinashi Y., Nagata K., Maruhashi A., Ono K. A novel concept of treatment of diffuse or multiple pleural tumors by boron neutron capture therapy (BNCT) // Radiother. Oncol. 2008. V. 88, № 2. P. 192–195.
- Suzuki M., Sakurai Y., Hagiwara S., Masunaga S., Kinashi Y., Nagata K., Maruhashi A., Kudo M., Ono K. First attempt of boron neutron capture therapy (BNCT) for hepatocellular carcinoma // Jpn. J. Clin. Oncol. 2007. V. 37, № 5. P. 376-381.
- 41. Hirose K., Konno A., Hiratsuka J., Yoshimoto S., Kato T., Ono K., Otsuki N., Hatazawa J., Tanaka H., Takayama K., Wada H., Suzuki M., Sato M., Yamaguchi H., Seto I., Ueki Y., Iketani S., Imai S., Nakamura T., Ono T., Endo H., Azami Y., Kikuchi Y., Murakami M., Takai Y. Boron neutron capture therapy using cyclotron-based epithermal neutron source and borofalan (10B) for recurrent or locally advanced head and neck cancer (JHN002): An open-label phase II trial // Radiotherapy and Oncology. 2021. V. 155. P. 182–187.
- 42. Kawabata S., Suzuki M., Hirose R., Tanaka H., Kato T., Goto H., Narita Y., Miyatake S-Y. Accelerator-based BNCT for patients with recurrent glioblastoma: a multicenter phase II study. Neuro-Oncology Advances. 2021. V. 3, № 1. P. 1–9.
- 43. https://en.neuboron.com/news/296.html
- 44. https://isnct.net/blog/2023/01/12/newsletter-18/
- 45. Таблицы физических величин. Справочник / Под ред. акад. И.К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1008 с.
- Kononov V., Bokhovko M., Kononov O. Accelerator based neutron sources for medicine // Proc. Intern. Symp. Boron Neutron Capture Therapy / S. Taskaev (ed.). July 7–9, 2004, Novosibirsk. 2004. P. 62–68.
- Blue T., Yanch J. Accelerator-based epithermal neutron sources for boron neutron capture therapy of brain tumors // J. Neuro-Oncol. 2003. V.62. P. 19-31.
- Kreiner A. Accelerator-based BNCT // Neutron Capture Therapy: Principles and Applications / W. Sauerwein, A. Wittig, R. Moss, Y. Nakagawa (eds.). Springer, 2012. P. 14–54.
- 49. Lee C., Zhou X. Thick target neutron yields for the  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$  reaction near threshold // Nucl. Instr. Meth. B. 1999. V. 152. P. 1–11.
- Taskaev S., Berendeev E., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov I., Koshkarev A., Makarov A., Ostreinov G., Porosev V., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E., Sorokin I., Sycheva T., Verkhovod G. Neutron Source Based on Vacuum Insulated Tandem Accelerator and Lithium Target // Biology. 2021. V. 10. 350.
- 51. Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Leonov V., Porosev V., Savinov G., Savinov S., Shchudlo I., Taskaev S., Verkhovod G. Evaluation of depth-dose profiles in a water phantom at the BNCT facility at BINP // JINST. 2021. V. 16. P10016.

- 52. Баянов Б.Ф., Кандиев Я.З., Кашаева Е.А., Малышкин Г.Н., Таскаев С.Ю., Чудаев В.Я. Защитный заглубленный контейнер для выдержки и временного хранения активированных мишеней // ПТЭ. 2010. № 6. С. 117-120.
- 53. Salimov R., Cherepkov V., Golubenko J., Krainov G., Korabelnikov M., Kuznetsov S., Kuksanov N., Malinin A., Nemytov P., Petrov S., Pridnokov V., Fadeev S., Veis M. DC high power electron accelerators of ELV-series: status, development, applications // Radiat. Phys. Chem. 2000. V. 57. P. 661–665.
- 54. Belchenko Y., Grigoryev E. Surface-plasma negative ion source for the medicine accelerator // Rev. Sci. Instr. 2002. V. 73. P. 939.
- 55. Широков В.В. Исследование электрической прочности высоковольтных вакуумных зазоров // ПТЭ. 1990. № 5. С. 148–152.
- 56. Крючков А.М., Сорокин И.Н., Широков В.В. Работы по исследованию и созданию ускорительных трубок высоковольтных ускорителей заряженных частиц. Препринт ИЯФ СО РАН. № 54. Новосибирск, 1994. 40 с.
- 57. Сорокин И.Н., Широков В.В. Высоковольтные элементы ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2007. № 6. С. 5–10.
- 58. Сорокин И.Н. Высоковольтная прочность ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией: Автореф. дисс. канд. тех. наук. Новосибирск, 2014. 108 с.
- 59. Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю. Подъем напряжения на высоковольтных вакуумных зазорах ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2014. № 4. С. 5–8.
- 60. Сливков И.Н., Михайлов В.И., Сидоров В.И. Электрический пробой и разряд в вакууме. М.: Атомиздат. 1966.
- Ергаков В.А., Крючков П.П., Треоуховский Ю.В., Хараюзов В.А. Электрический сепаратор с катодом из проводящего стекла // ПТЭ. 1969. № 4. С. 30–36.
- 62. Эспе В. Технология электровакуумных материалов. М.: Гос. энергетическое изд-во. 1962. 634 с.
- 63. Башкирцев А.Г., Иванов А.А., Касатов Д.А., Кузнецов А.С., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Чудаев В.Я. Рентгеновское излучение высоковольтных элементов тандемного ускорителя с вакуумной изоляцией // Мед. физ. 2012. № 2. С. 5–11.
- 64. Алейник В.И., Иванов А.А., Кузнецов А.С., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю. Темновые токи ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2013. № 5. С. 5–13.
- 65. Колесников Я.А., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю. Повышение электрической прочности ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2020. № 6. С. 17–25.
- 66. Kolesnikov Ya., Sorokin I., Taskaev S. Electrical strength of the high-voltage gaps of the tandem accelerator with vacuum insulation // Proc. 27th Intern. Symp. on Discharges and Electrical Insulation in Vacuum. Suzhou, China, 2016. V.2. P.778-781.
- 67. Деревянкин Г.Е., Димов Г.И., Долгушин В.М., Драничников А.Н., Крайнов Г.С., Кривенко А.С., Пальчиков В.Е., Петриченков М.В., Похлебе-

нин Е.И., Салимов Р.А., Сильвестров Г.И., Таскаев С.Ю., Широков В.В. Перезарядная мишень 40 мА 2 МэВ ускорителя-тандема. Препринт ИЯФ СО РАН. № 23. Новосибирск, 2001. 18 с.

- 68. Лойцянский Л.Г. Механика жидкости и газа. М.: Наука, 1978. 846 с.
- Кабанцев А.А., Соколов В.Г., Таскаев С.Ю. Уменьшение плотности мишенной плазмы при инжекции в пробкотрон атомарных пучков // Физика плазмы. 1995. Т. 21. С. 775–783.
- 70. Barnet C., Ray J., Ricci E., et al. Atomic data for controlled fusion research. Preprint Oak Ridge National Laboratory, № 5206. Oak Ridge, 1977.
- 71. Таскаев С.Ю. Газовая обдирочная мишень. Патент на изобретение № 2558384 от 03.07.2015.
- 72. Воблый П.Д., Макаров А.Н., Остреинов Ю.М., Таскаев С.Ю. Газовая обдирочная мишень. Патент на изобретение № 2595785 от 04.08.2016.
- 73. *Таскаев С.Ю*. Газовая обдирочная мишень. Патент на изобретение № 2634310 от 25.10.2017.
- 74. Макаров А.Н., Соколова Е.О., Таскаев С.Ю. Люминесценция литиевой мишени при облучении протонным пучком // ПТЭ. 2021. № 1. С. 30–33.
- 75. Быков Т.А., Касатов Д.А., Колесников Я.А., Кошкарев А.М., Макаров А.Н., Остреинов Ю.М., Соколова Е.О., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Измерение проволочным сканером пучка отрицательных ионов водорода, инжектируемого в ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2018. № 5. С. 90–95.
- Ivanov A., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Ostreinov Yu., Shchudlo I., Sorokin I., Taskaev S. Suppression of an unwanted flow of charged particles in a tandem accelerator with vacuum insulation // JINST. 2016. V. 11. P04018.
- 77. Деревянкин Г.Е., Крайнов Г.С., Крючков А.М., Сильвестров Г.И., Таскаев С.Ю., Тиунов М.А. Ионно-оптический тракт 2,5 МэВ 10 мА ускорителя-тандема. Препринт ИЯФ СО РАН. № 24. Новосибирск, 2002. 23 с.
- 78. Гигиенические требования к размещению и эксплуатации ускорителей электронов с энергией до 100 МэВ. Санитарные правила и нормы Сан-ПиН 2.6.1.2573-10, 2010.
- 79. Арифов У.А., Рахимов Р.Р., Хозинский О.В. Электронная эмиссия при бомбардировке металлов некоторыми ионами инертных газов в области энергии до 50 кэВ // Изв. АН СССР, Серия: физическая. 1962. Т. 26. С. 1398–1402.
- 80. Габович М.Д. Физика и техника плазменных источников ионов. М.: Атомиздат, 1972. 304 с.
- Andersen H., Ziegler J. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements. Vol. 3 of the stopping powers and ranges of ions in matter. Oxford: Pergamon Press, 1977. 321 p.
- Bayanov B., V. Belov, V. Kindyuk, E. Oparin, S. Taskaev. Lithium neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source // Appl. Radiat. Isot. 2004. V.61. P.817–821.
- Кутателадзе С.С. Основы теории теплообмена. М.: Атомиздат, 1979. 416 с.

- 84. Таскаев С.Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов. Автореф. дисс. доктор физ.-мат. наук. Новосибирск, 2014. 295 с.
- 85. Колесников Я.А. Исследование и оптимизация транспортировки и ускорения пучка ионов в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией: Автореф. дисс. канд. физ.-мат. наук. Новосибирск, 2022. 149 с.
- 86. Алейник В.И., Кузнецов А.С., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Тиунов М.А., Щудло И.М. Калибровка обдирочной мишени ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // Науч. вест. Новосибирского гос. техн. ун-та. 2013. № 1. С. 83-92.
- 87. Алейник В.И., Башкирцев А.Г., Кузнецов А.С., Макаров А.Н., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Тиунов М.А., Щудло И.М. Оптимизация транспортировки пучка отрицательных ионов водорода в ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией // Докл. АН высшей школы Российской Федерации. 2013. № 1. С. 47–55.
- 88. Башкирцев А.Г., Иванов А.А., Касатов Д.А., Кузнецов А.С., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Чудаев В.Я. Рентгеновское излучение высоковольтных элементов ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией. Докл. АН высшей школы Российской Федерации // 2013. № 1. С. 56–62.
- Kasatov D., Kuznetsov A., Makarov A., Shchudlo I., Sorokin I., Taskaev S. Proton beam of 2 MeV 1.6 mA on a tandem accelerator with vacuum insulation// JINST. 2014. V. 9. P12016.
- 90. Касатов Д.А., Макаров А.Н., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Регистрация тока, сопутствующего ионному пучку в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией // Письма в ЖТФ. 2015. Т. 41. С. 74–80.
- Sorokin I., Taskaev S. A new concept of a Vacuum Insulation Tandem Accelerator // Appl. Radiat. Isot. 2015. V. 106. P. 101–103.
- Makarov A., Ostreinov Yu., Taskaev S., Vobly P. Modification of the argon stripping target of the tandem accelerator // Appl. Radiat. Isot. 2015. V. 106. P. 53–56.
- 93. Таскаев С.Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов // ЭЧАЯ. 2015. Т. 46, № 6. С. 1770–1830.
- 94. Иванов А.А., Касатов Д.А., Кошкарев А.М., Макаров А.Н., Остреинов Ю.М., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Получение протонного пучка с током 5 мА в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией // Письма в ЖТФ. 2016. Т. 42, вып. 12. С. 1–8.
- 95. Касатов Д.А., Колесников Я.А., Кошкарев А.М., Кузнецов А.С., Макаров А.Н., Соколова Е.О., Сорокин И.Н., Сычева Т.В., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Эксперименты по повышению параметров VITA для проведения БНЗТ // Письма в ЭЧАЯ. 2016. Т. 13, вып. 7. С. 954–956.
- 96. Домаров Е.В., Иванов А.А., Куксанов Н.К., Салимов Р.А., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Черепков В.Г. Высоковольтный секционированный выпрямитель для компактного ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2017. № 1. С. 77-81.
- 97. Таскаев С.Ю. Разработка ускорительного источника эпитепловых нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии // ЭЧАЯ. 2019. Т.50, № 5. С. 657-669.

- 98. Колесников Я.А., Кошкарев А.М., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Диагностика эффективности газовой обдирочной мишени ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2020. № 3. С. 25–29.
- 99. Быков Т.А., Касатов Д.А., Колесников Я.А., Кошкарев А.М., Макаров А.Н., Остреинов Г.М., Соколова Е.О., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Исследование влияния пространственного заряда на транспортировку 2 МэВ пучка протонов в ускорительном источнике эпитепловых нейтронов // ЖТФ. 2021. Т.91, № 1. С. 105–109.
- 100. Колесников Я.А., Остреинов Г.М., Пономарев П.Д., Савинов С.С., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Измерение тока пучка ионов аргона, сопутствующего пучку протонов, в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией // ПТЭ. 2021. № 4. С. 5–9.
- 101. *Таскаев С.Ю., Сорокин И.Н.* Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией. Патент на изобретение № 2582588 от 04.04.2016.
- 102. Иванов А.А., Таскаев С.Ю. Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией. Патент на изобретение № 2610148 от 08.02.2017.
- 103. *Таскаев С.Ю., Сорокин И.Н.* Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией. Патент на изобретение № 2653840 от 15.05.2018.
- 104. Mitsumoto T., Yajiima S., Tsutsui H., Ogasawara T., Fujita K., Tanaka H., Sakurai Y., Maruhashi A. Cyclotron-based neutron source for BNCT // Proc. XIV Intern. Congress on Neutron Capture Therapy, October 25–29, 2010, Buenos Aires, Argentina. 2010. P. 510–522.
- 105. Schwartz N., Nicholas J., Jackson Z., Ireland P. Development of a Novel DEMO divertor target: spiral plate module // Physica Scripta. 2021. V. 96. 124027.
- 106. Handbook of Stable Isotope Analytical Techniques. Vol. II / Ed. P.A. de Grot. Elsevier, 2009. P. 1123–1321.
- 107. Lieberman K., Alexander G.J., Sechzer J.A. Stable isotopes of lithium: dissimilar biochemical and behavioral effects. Experientia. 1986. V. 42, № 9. P. 985–987.
- 108. Andersen H., Ziegler J. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements. Vol. 3 of the stopping and ranges of ions in matter. Pergamon Press Inc., 1977.
- 109. Oura K., Lifshits V., Saranin A., et al. Surface Science An Introduction. New York: Springer-Verlag, 2003. 440 p.
- 110. SIMNRA v. 7.03 with SigmaCalc 2.0 for single user. License № 1801-4848-WT-WA.
- 111. Макаров А.Н. Измерение спектра эпитепловых нейтронов ускорительного источника времяпролетным методом: Автореф. дисс. канд. физ.-мат. наук. Новосибирск, 2015. 109 с.
- 112. Касатов Д.А. Исследование материалов нейтроногенерирующей мишени для бор-нейтронозахватной терапии: Автореф. дисс. канд. физ.-мат. наук. Новосибирск, 2022. 143 с.
- 113. Соколова Е.О. Исследование и оптимизация тонкой литиевой мишени для генерации нейтронов: Автореф. дисс. канд. физ.-мат. наук. Новосибирск, 2022. 127 с.

- 114. Бикчурина М.И. Исследование генерирующих свойств литиевой мишени: Автореф. дисс. канд. физ.-мат. наук. Новосибирск, 2023. 115 с.
- 115. Belov V., Fadeev S., Karasyuk V., Kononov V., Kononov O., Kuksanov N., Kraynov G., Petrov Y., Pidyakov V., Rachkov V., Salimov R., Silvestrov G., Smirnov G., Taskaev S., Villeval'd G. Neutron producing target for accelerator based neutron source for NCT // Research and development in neutron capture therapy / W. Sauerwein, R. Moss, A. Wittig (eds.). Monduzzi Editore, Bologna. 2002. P. 247–252.
- 116. Bayanov B., Belov V., Kindyuk V., Oparin E., Taskaev S. Lithium neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source // Appl. Radiat. Isot. 2004. V. 61. P. 817–821.
- 117. Bayanov B., Belov V., Taskaev S. Neutron producing target for accelerator based neutron capture therapy // J. Phys. 2006. V. 41. P. 460–465.
- 118. *Taskaev S.*, *Bayanov B.*, *Belov V.*, *Zhoorov E.* Development of lithium target for accelerator based neutron capture therapy / Advances in Neutron Capture Therapy. 2006. P. 292–295.
- 119. Баянов Б.Ф., Журов Е.В., Таскаев С.Ю. Измерение толщины литиевого слоя // ПТЭ. 2008. № 1. С. 160–162.
- 120. Баянов Б.Ф., Таскаев С.Ю., Ободников В.И., Тишковский Е.Г. Влияние остаточного газа на литиевый слой нейтроногенерирующей мишени // ПТЭ. 2008. № 3. С. 119–124.
- 121. Кузнецов А.С., Малышкин Г.Н., Макаров А.Н., Сорокин И.Н., Суляев Ю.С., Таскаев С.Ю. Первые эксперименты по регистрации нейтронов на ускорительном источнике для бор-нейтронозахватной терапии // Письма в ЖТФ. 2009. Т. 35, вып. 8. С. 1–6.
- 122. Bayanov B., Kashaeva E., Makarov A., Malyshkin G., Samarin S., Taskaev S. A neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source // Appl. Radiat. Isot. 2009. V. 67, Iss. 7–8, Suppl. 1. P. S282–S284.
- 123. Bayanov B., Burdakov A., Chudaev V., Ivanov A., Konstantinov S., Kuznetsov A., Makarov A., Malyshkin G., Mekler K., Sorokin I., Sulyaev Yu., Taskaev S. First neutron generation in the BINP accelerator based neutron source // Appl. Radiat. Isot. 2009. V.67, Iss.7–8, Suppl. 1. P. S285–S287.
- 124. Bayanov B., Burdakov A., Kuznetsov A., Makarov A., Sinitskii S., Sulyaev Yu., Taskaev S. Dosimetry and spectrometry at accelerator based neutron source for boron neutron capture therapy // Radiat. Measurements. 2010. V. 45. P. 1462–1464.
- 125. Aleynik V., Bayanov B., Burdakov A., Makarov A., Sinitskiy S., Taskaev S. New technical solution for using the time-of-flight technique to measure neutron spectra // Appl. Radiat. Isot. 2011. V. 69. P. 1639–1641.
- 126. Алейник В.И., Касатов Д.А., Макаров А.Н., Таскаев С.Ю. Измерение спектра нейтронов ускорительного источника времяпролетным методом // ПТЭ. 2014. № 4. С. 9–13.
- 127. Kasatov D., Makarov A., Shchudlo I., Taskaev S. A study of gamma-ray and neutron radiation in the interaction of a 2 MeV proton beam with various materials // Appl. Radiat. Isot. 2015. V. 106. P. 38–40.

- 128. Kasatov D., Kolesnikov Ia., Koshkarev A., Makarov A., Sokolova E., Shchudlo I., Taskaev S. Method for in situ measuring the thickness of a lithium layer // JINST. 2020. V. 15. P10006.
- 129. Bikchurina M., Bykov T., Byambatseren E., Ibrahem I., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Konovalova V., Koshkarev A., Makarov A., Ostreinov G., Savinov S., Sokolova E., Sorokin I., Shchudlo I., Sycheva T., Verkhovod G., Taskaev S. High Flux Neutron Source for Various Applications // J. Neutron Res. 2022. V. 24. P. 273–279.
- 130. Смирнов Г.Г., Таскаев С.Ю., Сильвестров Г.И., Кононов В.Н. Нейтронопродуцирующий мишенный узел. Патент на изобретение № 2282908 от 27.08.2006.
- 131. Смирнов Г.Г., Таскаев С.Ю., Сильвестров Г.И., Кононов В.Н. Способ получения нейтронов. Патент на изобретение № 2282909 от 27.08.2006.
- 132. Смирнов Г.Г., Таскаев С.Ю., Сильвестров Г.И., Кононов В.Н. Нейтронопродуцирующий мишенный узел. Патент на изобретение № 2326513 от 10.06.2008.
- 133. Баянов Б.Ф., Таскаев С.Ю. Литиевый контейнер. Патент WO/2008/ 147239 от 04.12.2008.
- 134. *Таскаев С.Ю.*, *Баянов Б.Ф.* Нейтроногенерирующая мишень. Патент на изобретение № 2610301 от 09.02.2017.
- 135. Taskaev S., Makarov A., Sokolova E. Systems, devices, and methods for deformation reduction and resistance in metallic bodies. United States Patent No. US 2022/0030696 A1, Jan. 27, 2022.
- 136. Palamara F., Mattioda F., Varone R., Guisti V. Proton accelerator-based epithermal neutron beam for BNCT // Research and development in neutron capture therapy / W. Sauerwein, R. Moss, A. Wittig (eds.). Monduzzi Editore, Bologna. 2002. P. 283–288.
- 137. Hawk A., Blue T., Woolard J. and Gupta G. Effects of thickness on neutron field quality for an ABNS // Research and development in neutron capture therapy / W. Sauerwein, R. Moss, A. Wittig (eds.). Monduzzi Editore, Bologna. 2002. P. 253–257.
- 138. Kononov O., Kononov V., Bokhovko M., Korobeynikov V., Soloviev A., Sysoev A., Gulidov I., Chu W., Nigg D. Optimization of an accelerator-based epithermal neutron source for neutron capture therapy // Appl. Radiat. Isot. 2004. V. 61. P. 1009–1013.
- 139. Bengua G., Kobayashi T., Tanaka K. and Nakagawa Y. Optimization parameters for BDE in BNCT using near threshold  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$  direct neutrons // Appl. Radiat. Isot. 2004. V. 61. P. 1003–1008.
- 140. Stichelbaut F., Forton E., Jongen Y. Design of a Beam Shaping Assembly for an Accelerator-Based BNCT System // Advances in Neutron Capture Therapy 2006, Proc. 12th Intern. Congress on Neutron Capture Therapy, October 9–13, 2006, Takamatsu, Japan. 2006. P. 308–311.
- 141. Tanaka K., Kobayashi T., Bengua G., Nakagawa Y., Endo S., Hoshi M. Characterization indexes of moderator assembly for accelerator-based BNCT using <sup>7</sup>Li(p,n) neutrons at proton energy of 2.5 MeV // Advances in Neutron

Capture Therapy 2006, Proc. 12th Intern. Congress on Neutron Capture Therapy, October 9–13, 2006, Takamatsu, Japan. 2006. P. 323–326.

- 142. Terlizzi R., Colonna N., Colangelo P., Maiorana A., Marrone S., Raino A., Tagliente G., Variale V. Design of an accelerator-based neutron source for neutron capture therapy // Appl. Radiat. Isot. 2009. V. 67, Iss. 7–8, suppl. P. S292–S295.
- 143. *Minsky D., Kreiner A., Valda A.* AB-BNCT beam shaping assembly based on  ${}^{7}\text{Li}(p, n){}^{7}\text{Be}$  reaction optimization // Appl. Radiat. Isot. 2011. V. 69, Iss. 12. P. 1668–1671.
- 144. Burlon A., Girola S., Valda A., Minsky D., Kreiner A., Sanchez G. Design of a beam shaping assembly and preliminary modelling of a treatment room for accelerator-based BNCT at CNEA // Appl. Radiat. Isot. 2011. V.69, Iss. 12. P. 1688–1691.
- 145. Kumada H., Takada K. Treatment planning system and patient positioning for boron neutron capture therapy // Therapeutic Radiology and Oncology. 2018. V.2. P. 1–11.
- 146. *Lee P., Tang X., Geng C., Liu Y.-H.* A bi-tapered and air-gapped beam shaping assembly used for AB-BNCT // Appl. Radiat. Isot. 2021. V. 167. 109392.
- 147. Kato T., Hirose K., Tanaka H., Mitsumoto T., Motoyanagi T., Arai K., Harada T., Takeuchi A., Kato R., Yajima S., Takai Y. Design and construction of an accelerator-based boron neutron capture therapy (AB-BNCT) facility with multiple treatment rooms at the Southern Tohoku BNCT Research Center // Appl. Radiat. Isot. 2020.V. 156. 108961.
- 148. Ogawara R., Kusumoto T., Konishi T., Hamano T., Kodaira S. Polyethylene moderator optimized for increasing thermal neutron flux in the NASBEE accelerator-based neutron field // Radiat. Measurements. 2020. V. 137. 106358.
- 149. Torres-Sánchez P., Porras I., Ramos-Chernenko N., Saavedra F., Praena J. Optimized beam shaping assembly for a 2.1-MeV proton-accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy // Sci. Rep. 2021. V. 11. 7576.
- 150. *Li G., Jiang W., Zhang L., Chen W., Li Q.* Design of Beam Shaping Assemblies for Accelerator-Based BNCT With Multi-Terminals // Frontiers in Public Health. 2021. V. 9. 642561.
- 151. Torres-Sánchez P., Porras I., Ramos-Chernenko N., Saavedra F., Praena J. Study of the upper energy limit of useful epithermal neutrons for Boron Neutron Capture Therapy in different tissues // Radiat. Phys. Chem. 2021. V. 185. 109490.
- 152. Goorley J., Kiger 3<sup>rd</sup> W., Zamenhof R. Reference dosimetry calculations for neutron capture therapy with comparison of analytical and voxel models // Med. Phys. 2002, V. 29, № 2. P. 145–156.
- 153. *Harling O., Riley K.* Fission reactor neutron sources for neutron capture therapy: a critical review // J. Neuro-Oncol. 2003. V. 62. P. 7–17.
- 154. Aleynik V., Bashkirtsev A., Kanygin V., Kasatov D., Kuznetsov A., Makarov A., Schudlo I., Sorokin I., Taskaev S., Tiunov M. Current progress and

future prospects of the VITA based neutron source // Appl. Radiat. Isot. 2014. V. 88. P. 177-179.

- 155. Current status of neutron capture therapy. IAEA-TECDOC-1223, IAEA, 2001.
- 156. Zaidi L. Beam shaping assembly optimization for boron Neutron Capture Therapy (BNCT). Ph.D. thesis. Algiers, Algeria, 2018. 141 p.
- 157. Заиди Л., Кашаева Е.А., Лежнин С.И., Малышкин Г.Н., Самарин С.И., Сычева Т.В., Таскаев С.Ю., Фролов С.А. Система формирования пучка нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии // Ядерная физика. 2017. Т. 80, № 1. С. 63-69.
- 158. Zaidi L., Belgaid M., Taskaev S., Khelifi R. Beam Shaping Assembly Design of  ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$  Neutron Source for Boron Neutron Capture Therapy of Deep-seated Tumor // Appl. Radiat. Isot. 2018. V. 139. P. 316–324.
- 159. Sycheva T., Berendeev E., Verkhovod G., Taskaev S. A single coned Poly-Biz moderator designed for animal irradiation in boron neutron capture therapy. Appl. Radiat. Isot. 2023. V. 198. 110818.
- 160. *Таскаев С.Ю., Каныгин В.В.* Система формирования пучка нейтронов. Патент на изобретение № 2540124 от 16.12.2014.
- 161. *Таскаев С.Ю*. Способ получения пучка эпитепловых нейтронов. Патент на изобретение № 2722965 от 05.06.2020.
- 162. *Guan X.C., Gong Y., Murata I., Wang T.S.* The new design and validation of an epithermal neutron flux detector using  ${}^{71}\text{Ga}(n,\gamma){}^{72}\text{Ga}$  reaction for BNCT // JINST. 2019. V. 14. P06016.
- 163. Kobayashi T., Kanda K. Microanalysis system of ppm order B-10 concentrations in tissue for neutron capture therapy by prompt gammaray spectrometry // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 1983. V.204. P.525-531.
- 164. *Porosev V., Savinov G.* Evaluation of boron-enriched plastic scintillator for thermal neutron detection // JINST. 2019. V. 14. P06003.
- 165. Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Porosev V., Savinov G., Shchudlo I., Taskaev S., Verkhovod G. Initial trials of a dose monitoring detector for boron neutron capture therapy // JINST. 2021. V. 16. P01024.
- 166. Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Leonov V., Porosev V., Savinov G., Savinov S., Shchudlo I., Taskaev S., Verkhovod G. Evaluation of depth-dose profiles in a water phantom at the BNCT facility at BINP // JINST. 2021. V. 16. P10016.
- 167. Dymova M., Dmitrieva M., Kuligina E., Richter V., Savinov S., Shchudlo I., Sycheva T., Taskaeva I., Taskaev S. Method of measuring high-LET particles dose // Radiat. Res. 2021. V. 196. P. 192–196.
- 168. Zaboronok A., Taskaev S., Volkova O., Mechetina L., Kasatova A., Sycheva T., Nakai K., Kasatov D., Makarov A., Kolesnikov Ia., Shchudlo I., Bykov T., Sokolova E., Koshkarev A., Kanygin V., Kichigin A., Mathis B., Ishikawa E., Matsumura A. Gold Nanoparticles Permit in Situ Absorbed Dose Evaluation in Boron Neutron Capture Therapy for Malignant Tumors // Pharmaceutics. 2021. V. 13. 1490.

- 169. Byambatseren E., Burdakov A., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Savinov S., Sycheva T., Taskaev S. Validation and optimization of the epithermal neutron flux detector using the  $^{71}$ Ga $(n, \gamma)^{72}$ Ga reaction // JINST. 2023. V. 18. P02020.
- 170. Таскаев С.Ю., Заборонок А.А. Способ измерения поглощенной дозы при бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей. Патент на изобретение № 2606337 от 10.01.2017.
- 171. Касатова А.И., Касатов Д.А., Таскаев С.Ю. Способ определения поглощенной дозы от тепловых нейтронов при бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей. Патент на изобретение № 2709682 от 19.12.2019.
- 172. Таскаева Ю.С., Таскаев С.Ю. Способ определения поглощенной дозы ядер отдачи. Патент на изобретение № 2743417 от 18.02.2021.
- 173. Rykalin V., Brekhovskikh V., Chernichenko S., Gorin A., Semenov V. Development of the Polystyrene Scintillator Technology and Particle Detectors on Their Base // Journal of Physical Science and Application. 2015. V.5. P. 6–13.
- 174. Callier S., Dela Taile C.. Martin-Chassard G., Raux L. EASIROC, an Easy & Versatile ReadOut Device for SiPM // Phys. Procedia. 2012. V. 37. P. 1569–1576.
- 175. Zaboronok A., Byvaltsev V., Kanygin V., Iarullina A., Kichigin A., Volkova O., Mechetina L., Taskaev S., Muhamadiyarov R., Nakai K., Sato E., Yamamoto T., Mathis B., Matsumura A. Boron-neutron capture therapy in Russia: preclinical evaluation of efficacy and perspectives of its application in neurooncology // New Armenian Medical Journal. 2017. V. 11, № 1. P. 1–9.
- 176. Sato E., Zaboronok A., Yamamoto T., Nakai K., Taskaev S., Volkova O., Mechetina L., Taranin A., Kanygin V., Isobe T., Mathis B., Matsumura A. Radiobiological response of U251MG, CHO-K1 and V79 cell lines to accelerator-based boron neutron capture therapy // J. Radiat. Res. 2018. V. 59, № 2. P. 101–107.
- 177. Каныгин В.В., Завьялов Е.Л., Симонович А.Е., Касатова А.И., Кичигин А.И., Разумов И.А., Таскаев С.Ю. Бор-нейтронозахватная терапия глиобластомы человека на моделях опухоли in vivo // Современные проблемы науки и образования. 2019. № 1. С. 28480.
- 178. Бывальцев В.А., Завьялов Е.Л., Каныгин В.В., Касатова А.И., Кичигин А.И., Разумов И.А., Сычева Т.В., Таскаев С.Ю. Цитопатические эффекты бор-нейтронозахватной терапии на ускорительном источнике эпитепловых нейтронов для культуры клеток глиобластомы человека // Сибирский онкологический журнал. 2019. Т. 186 № 4. С. 34–42.
- 179. Каныгин В.В., Кичигин А.И., Завьялов Е.Л., Разумов И.А., Симонович А.Е., Таскаев С.Ю. Радиобиологический эффекты пучка ускорительного источника нейтронов в Институте ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН // Современные проблемы науки и образования. 2019. № 6. С. 29498.

- 180. Касатова А.И., Каныгин В.В., Разумов И.А., Таскаев С.Ю., Касатов Д.А., Бывальцев В.А. Исследование биологической эффективности бор-нейтронозахватной терапии на клетках глиомы и меланомы человека // Патологическая физиология и экспериментальная терапия. 2020. Т. 64, № 2. С. 117–123.
- 181. Zavjalov E., Zaboronok A., Kanygin V., Kasatova A., Kichigin A., Mukhamadiyarov R., Razumov I., Sycheva T., Mathis B., Maezono S., Matsumura A., Taskaev S. Accelerator-based boron neutron capture therapy for malignant glioma: a pilot neutron irradiation study using boron phenylalanine, sodium borocaptate and liposomal borocaptate with a heterotopic U87 glioblastoma model in SCID mice // Intern. J. Radiat. Bioly. 2020. V.96, N<sup>®</sup> 7. P. 868-878.
- 182. Каныгин В.В., Касатова А.И., Разумов И.А., Завьялов Е.Л., Кичигин А.И., Мухамадияров Р.А., Таскаев С.Ю. Оценка эффективности воздействия бор-нейтронозахватной терапии на различные опухолевые и нормальную клеточные культуры // Сибирский онкологический журнал. 2021. Т.20, № 3. С.56-66.
- 183. Каныгин В.В., Касатова А.И., Завьялов Е.Л., Разумов И.А., Колесников С.И., Кичигин А.И., Соловьева О.И., Цыганкова А.Р., Таскаев С.Ю., Касатов Д.А., Сычева Т.В., Бывальцев В.А. Эффекты бор-нейтронозахватной терапии на рост подкожных ксенографтов колоректальной аденокарциномы человека SW-620 у иммунодефицитных мышей // Бюллетень экспериментальной биологии и медицины. 2021. Т. 172, № 9. С. 356–361.
- 184. Kanygin V., Kichigin A., Zaboronok A., Kasatova A., Petrova E., Tsygankova A., Zavjalov E., Mathis B., Taskaev S. In vivo Accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy for Spontaneous Tumors in Large Animals: Case Series // Biology. 2022. V. 11. 138.
- 185. Kanygin V., Zaboronok A., Kichigin A., Petrova E., Guselnikova T., Kozlov A., Lukichev D., Mathis B., Taskaev S. Gadolinium neutron capture therapy for cats and dogs with spontaneous tumors using Gd-DTPA // Veterinary Sciences. 2023. V. 10. 274.
- 186. Успенский С.А., Хаптаханова П.А., Заборонок А.А., Куркин Т.С., Волкова О.Ю., Мечетина Л.В., Таранин А.Н., Каныгин В.В., Мацумура А., Таскаев С.Ю. Получение наночастиц элементного бора методом ультразвуковой обработки в водной среде и их применение в бор-нейтронозахватной терапии. Доклады Российской академии наук // Химия, науки о материалах. 2020. Т. 491. С. 1–5.
- 187. Dymova M., Taskaev S., Richter V., Kuligina E. Boron neutron capture therapy: current status and future perspectives // Cancer Commun. 2020. V. 40. P. 406-421.
- 188. Vorobyeva M., Dymova M., Novopashina D., Kuligina E., Timoshenko V., Kolesnikov Ia., Taskaev S., Richter V., Venyaminova A. Tumor cell-specific 2'-fluoro RNA aptamer conjugated with closo-dodecaborate as a potential agent for boron neutron capture therapy // Intern. J. Molec. Sci. 2021. V. 22. 7326.

- 189. Popova T., Dymova M., Koroleva L., Zakharova O., Lisitskiy V., Raskolupova V., Sycheva T., Taskaev S., Silnikov V., Godovikova T. Homocystamide conjugates of human serum albumin as a platform to prepare bimodal multidrug delivery systems for boron-neutron capture therapy // Molecules. 2021. V. 26. 6537.
- 190. Zaboronok A., Khaptakhanova P., Uspenskii S., Bekarevich R., Mechetina L., Volkova O., Mathis B., Kanygin V., Ishikawa E., Kasatova A., Kasatov D., Shchudlo I., Sycheva T., Taskaev S., Matsumura A. Polymerstabilized elemental boron nanoparticles for boron neutron capture therapy: Initial irradiation experiments // Pharmaceutics. 2022. V. 14. 761.
- 191. Aiyyzhy K., Barmina E., Zavestovskaya I., Kasatova A., Petrunya D., Uvarov O., Saraykin V., Zhilnikova M., Voronov V., Shafeev G., Taskaev S., Zelepukin I., Deyev S. Laser ablation of Fe<sub>2</sub>B target enriched in <sup>10</sup>B content for boron neutron capture therapy // Laser Phys. Lett. 2022. V. 19. 066002.
- 192. Svishcheva N., Uspenskii S., Sedush N., Khaptakhanova P., Kasatova A., Buzin A., Dmitryakov P., Piskarev M., Aleksandrov A., Taskaev S. Biodegradable boron-containing poly(lactic acid) for fertilizers with prolonged action // Materials Today Commun. 2022. V. 33. 104514.
- 193. Novopashina D., Dymova M., Davydova A., Meschaninova M., Malysheva D., Kuligina E., Richter V., Kolesnikov Ia., Taskaev S., Vorobyeva M. Optamers for addressed boron delivery in BNCT: Effect of boron cluster attachment site on functional activity // Intern. J. Molec. Sci. 2023. V. 24. 306.
- 194. Romashchenko A., Petrovskii D., Trotsky S., Morozova K., Illarionova N., Zhukova M., Kiseleva E., Sharapova M., Zuev D., Kuper K., Taskaev S., Kasatova A., Kasatov D., Solovieva O., Razumov I., Gerlinskaya L., Moshkin M., Moshkin Y. Quantitative tracking of trans-synaptic nose-tobrain transport of nanoparticles and its modulation by odor, aging, and Parkinson's disease // Nano Res. 2023. V. 16, № 5. P. 7119–7133.
- 195. Raskolupova V., Wang M., Dymova M., Petrov G., Shchudlo I., Taskaev S., Abramova T., Godovikova T., Silnikov V., Popova T. Design of the new closo-dodecarborate-containing gemcitabine analogue for the albumin-based theranostics composition // Molecules. 2023. V. 28. 2672.
- 196. Успенский С.А., Хаптаханова П.А., Заборонок А.А., Куркин Т.С., Зеленецкий А.Н., Селянин М.А., Таскаев С.Ю. Способ получения композиций для бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей (варианты). Патент на изобретение № 2729458 от 30.04.2020.
- 197. Лучшие российские изобретения XXI века https://rospatent.gov.ru/ru/ news/luchshie-rossiyskie-izobreteniya-xxi-veka-29092021.
- 198. Uspenskij S., Haptahanova P., Zaboronok A., Kupkin T., Zeleneckij A., Selyanin M., Taskaev S. Method of producing a composition for boron neutron capture therapy of malignant tumors (embodiments). Патент Китая № CN 114072656 В от 10.03.2023.
- 199. Shoshin A., Burdakov A., Ivantsivskiy M., Polosatkin S., Klimenko M., Semenov A., Taskaev S., Kasatov D., Shchudlo I., Makarov A., Davydov N.

Qualification of Boron Carbide Ceramics for Use in ITER Ports // IEEE Trans. on Plasma Sci. 2020. V.48, Iss. 6. P. 1474–1478.

- 200. Shoshin A., Burdakov A., Ivantsivskiy M., Polosatkin S., Semenov A., Sulyaev Yu., Zaitsev E., Polozova P., Taskaev S., Kasatov D., Shchudlo I., Bikchurina M. Test results of boron carbide ceramics for ITER port protection // Fusion Engineering and Design. 2021. V. 168. 112426.
- 201. Shoshin A., Burdakov A., Ivantsivskiy M., Reichle R., Udintsev V., Guirao J., Pak S., Zvonkov A., Kravtsov D., Sorokina N., Sulyaev Y., Listopad A., Gavrilenko D., Taskaev A., Shabunin E., Seryomin, S. Shiyankov V., Zaytcev E., Seleznev P., Semenov A., Polosatkin S., Taskaev S., Kasatov D., Shchudlo I., Bikchurina M., Modestov V., Smirnov A., Pozhilov A., Lobachev A., Loginov I., Shagniev O., Kirienko I., Buslakov I. Integration of ITER diagnostic ports at the Budker Institute // Fusion engineering and design. 2022. V. 178. 113114.
- 202. Касатов Д.А., Кошкарев А.М., Макаров А.Н., Остреинов Г.М., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Источник быстрых нейтронов на основе ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией и литиевой мишени // ПТЭ. 2020. № 5. С. 5-9.
- Getting up to speed with neutron therapy https://www.nature.com/ articles/d42473-021-00133-3.
- 204. Дюсенова С.Е., Клямер Д.Д., Сухих А.С., Щудло И.М., Таскаев С.Ю., Басова Т.В., Громилов С.А. Влияние магнитного поля на структуру и сенсорные свойства PVD слоев фталоцианина титанила // Журнал структурной химии. 2023. Т. 64, № 3. 106824.
- 205. Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Makarov A., Shchudlo I., Sokolova E., Taskaev S. The measurement of the neutron yield of the <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be reaction in lithium targets // Biology. 2021. V. 10. 824.
- 206. Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Koshkarev A., Makarov A., Shchudlo I., Sokolova E., Taskaev S. Measurement of the  ${}^{7}\text{Li}(p, p'\gamma){}^{7}\text{Li}$  reaction cross-section and 478 keV photon yield from a thick lithium target at proton energies from 0.7 to 1.85 MeV // Appl. Radiat. Isot. 2021. V. 175. 109821.
- 207. Taskaev S., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Koshkarev A., Makarov A., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E. Measurement of the <sup>7</sup>Li( $p, p'\gamma$ )<sup>7</sup>Li reaction cross-section and 478 keV photon yield from a thick lithium target at proton energies from 0.65 MeV to 2.225 MeV // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B. 2021. V. 502. P. 85–94.
- 208. Taskaev S., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Makarov A., Ostreinov G., Savinov S., Sokolova E. Cross-section measurement for the <sup>7</sup>Li( $p, \alpha$ )<sup>4</sup>He reaction at proton energies 0.6 2 MeV // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B. 2022. V. 525. P. 55-61.
- 209. PINO neutron spectra from  $^7\mathrm{Li}(p,n)$  and  $^9\mathrm{Be}(p,n),$  https://exp-astro.de/ pino/
- 210. Кононов В.Н., Боховко М.В., Кононов О.Е., Кононова Н.П. Гамма-излучение нейтронного источника на основе реакции <sup>7</sup>Li(p, n)<sup>7</sup>Be. Препринт ФЭИ, № 2643. Обнинск, 1997. 10 с.

- 211. Savidou A., Aslanoglou X., Paradellis T., Pilakouta M. Proton induced thick target  $\gamma$ -ray yields of light nuclei at the energy region  $E_p = 1.0-4.1$  MeV // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. 1999. V. 152. P. 12–18.
- 212. Anttila A., Hanninen R., Raisanen J. Proton-induced thick-target gammaray yields for the elemental analysis of the Z = 3-9, 11–21 elements // J. Radionalytical Chem. 1981. V. 62. P. 293–306.
- 213. Lee C.L., Zhou X.-L., Kudchadker R.J., Harmon F., Harker Y.D. A Monte Carlo dosimetry?based evaluation of the <sup>7</sup>Li(p,n)7Be reaction near threshold for accelerator boron neutron capture therapy // Med. Phys. 2000. V.27. P. 192–202.
- 214. Saito T., Katabuchi T., Hales B., Igashira M. Measurement of thick-target gamma-ray production yields of the  ${}^{7}\text{Li}(p,p'){}^{7}\text{Li}$  and  ${}^{7}\text{Li}(p,\gamma){}^{8}\text{Be}$  reactions in the near-threshold energy region for the 7Li(p,n)7Be reaction // J. Nucl. Sci. and Techn. 2017. V. 54. P. 253–259.
- 215. Brown A.B., Synder C.W., Fowler W.A., Lauritsen C.C. Excited states of the mirror nuclei, Li<sup>7</sup> and Be<sup>7</sup> // Phys. Rev. 1951. V. 82. P. 159–180.
- 216. Mozer F., Fowler W.A., Lauritsen C.C. Inelastic scattering of protons by Li<sup>7</sup> // Phys. Rev. 1954. V.93. P. 829-830.
- 217. Presser G., Bass R. Reactions <sup>7</sup>Li + n, <sup>7</sup>Li + p and excited states of the A = 8 system // Nucl. Phys. A. 1972. V. 182. P. 321–341.
- 218. Aslam, Prestwich W.V., McNeill F.E. Thin target  ${}^{7}Li(p, p'\gamma){}^{7}Li$  inelastic gamma-ray yield measurements // J. Radioan. Nucl. Chem. 2002. V.254. P.533–544.
- 219. Mateus R., Jesus A.P., Braizinha B., Cruz J., Pinto J.V., Ribeiro J.P. Proton-induced  $\gamma$ -ray analysis of lithium in thick samples // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. 2002. V. 190. P. 117–121.
- 220. Nuclear Reaction Data Library ENDF/B-VIII.0.
- 221. Ziagkova A., Axiotis M., Harissopoulos S., Kokkoris M., Lagoyannis A., Maragkos F., Ntemou E., Taimpiri E. Differential cross section measurements of the <sup>7</sup>Li (p,pγ<sub>1-0</sub>)<sup>7</sup>Li reaction suitable for PIGE applications // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. 2023. V. 539. P. 113–119.
- 222. IBANDL Ion Beam Analysis Nuclear Data Library: URL: https:// www-nds.iaea.org/exfor/ibandl.htm.
- 223. JANIS Nuclear Energy Agency (NEA). URL: https://www.oecd-nea.org/ jcms/pl\_39910/janis.
- 224. Sweeney W.E., Marion Jr. B., Marion J.B. Gamma-ray transitions involving isobaric-spin mixed states in Be<sup>8</sup> // Phys. Rev. 1969. V. 182. P. 1007–1021.
- 225. Paneta V., Kafkarkou A., Kokkoris M., Lagoyannis A. Differential crosssection measurements for the <sup>7</sup>Li(p,  $p_0$ )<sup>7</sup>Li, <sup>7</sup>Li(p,  $p_1$ )<sup>7</sup>Li, <sup>7</sup>Li(p,  $\alpha_0$ )<sup>4</sup>He, <sup>19</sup>F(p,  $p_0$ )<sup>19</sup>F, <sup>19</sup>F(p,  $\alpha_0$ )<sup>16</sup>O and <sup>19</sup>F(p,  $\alpha_{1,2}$ )<sup>16</sup>O reactions // HNPS Advances in Nucl. Phys. 2012. V. 20. P. 53–59.
- 226. Dieumegard D., Maurel B., Amsel G. Microanalysis of Flourine by nuclear reactions // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 1980. V. 168, № 1-3. P. 93-103.
- 227. Cavallaro S., Potenza R., Rubbino A.  $Li^7 + p$  interaction and excited states of Be<sup>8</sup> // Nucl. Phys. 1962. V. 36. P. 597–614.

- 228. *Freeman J.M.*, *Hanna R.C.*, *Montague J.H.* The nuclear reaction  $\text{He}^4(\alpha, p)\text{Li}^7$  and its inverse: II. The reaction  $\text{Li}^7(p, \alpha)\text{He}^4$  // Nucl. Phys. 1958. V.5. P. 148–149.
- 229. Sagara A., Kamada K., Yamaguchi S. Depth profiling of lithium by use of the nuclear reaction  $^{7}\text{Li}(p, \alpha)^{4}\text{He}$  // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sect. B. 1988. V. 34, Nº 4. P. 465–469.
- 230. Ciric D.M., Popic R.V., Zakula R.B., Stepancic B.Z., Aleksic M.R., Setrajcic J.P. The interaction of <sup>7</sup>Li isotope with low energy proton and triton beams // Intern. J. Sci. Res. 1976. V. 6. P. 115.
- 231. Feldman L.C., Picraux S.T. (Eds.). Selected Low Energy Nuclear Reaction Data // Ion Beam Handbook for Material Analysis / J. Mayer, E. Rimini (eds.). Elsevier, 1977. P. 109–309.
- 232. Marion J., Wilson M. The <sup>7</sup>Li(p,γ)<sup>8</sup>Be\* reaction and single-particle levels in <sup>8</sup>Be // Nucl. Phys. 1966. V.77. P. 129–148.
- 233. Golicheff I., Loeuillet M., Engelmann Ch. Determination des fonctions d'excitation des reactions  ${}^{19}F(p,\alpha_0){}^{16}O$  et  ${}^{7}Li(p,\alpha_0){}^{4}He$  entre 150 et 1800 keV: Application a la mesure des concentrations superficielles de lithium et de fluor // J. Radioanalytical Chem. 1974. V.22,  $N \ge 1-2$ . P.113-129.
- 234. Широков Ю.М., Юдин Н.П. ЯФ. Т.1, 2. М.: Наука, 1982. 728 с.
- 235. *Мухин К.Н.* Экспериментальная ядерная физика. М.: Энергоатомиздат, 1993. 432 с.
- 236. Шерцер Б. Распыление твердых тел ионной бомбардировкой. Гл. 7. Развитие рельефа на поверхности вследствие имплантации ионов газа / Под ред. Р. Бериша. М: Мир, 1986. 336 с.
- 237. Гусева М.И., Мартыненко Ю.В. Радиационный блистеринг // УФН. 1981. Т. 135, № 4. С. 671–691.
- Ono K. Prospects for new era of boron neutron capture therapy and subjects for the future // Therapeutic Radiology and Oncology. 2018. V.2. P. 1–7.
- 239. *Edgecock T.*, *Bennett J.*, *Green S.* A study of the production of neutrons for Boron Neutron Capture Therapy using a proton accelerator // Proc. IPAC201, Dresden, Germany, 15 June 2014. WEPRO099.
- 240. Kurihara T., Kobayashi H., Matsumoto H., Yoshioka M. Neutron target research and development for BNCT: direct observation of proton induced blistering using light-polarization and reflectivity changes // J. Radioanalytical and Nucl. Chem. 2015. V. 305. P. 935–942.
- Fagotti E. MUNES project: status and perspectives of an RFQ based neutron facility in Italy // Symposium for North Eastern Accelerator Personnel, Legnaro, Italy, 30 Sept. – 5 Oct. 2012.
- 242. Kobayashi H., Kurihara T., Matsumoto H., Yoshioka M., Kumada H., Matsumura A., Sakurai H., Hiraga F., Kuyanagi Y., Nakamura T., Nakashima H., Shobata T., Hashirano T., Inoue F., Sennyu K., Sugano T., Ohba T., Tanaka Su. Construction of a BNCT facility using an 8-MeV high power proton linac in Tokai // Proc. IPAC2012, New Orleans, Louisiana, USA, 20–25 May 2012. THPPR048.

- 243. *Kiyanagi Y*. Accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy // Ther. Radiol. Oncol. 2018. V. 2. P. 55-67.
- 244. *Liu X.*, *Chen H.*, *Ton J.*, *He W.*, *Li X.*, *Liang T.*, *Li Y.*, *Yin W.* The Kinetic Behaviors of H Impurities in the Li/Ta Bilayer: Application for the Accelerator-Based BNCT // Nanomaterials. 2019. V. 9, № 8. 1107.
- 245. Mardor I., Aviv O., Avrigeanu M., Berkovits D., Dahan A., Dickel T., Eliyahu I., Gai M., Gavish-Segev I., Halfon S., Hass M., Hirsh T., Kaiser B., Kijel D., Kreisel A., Mishnayot Y., Mukul I., Ohayon B., Paul M., Perry A., Rahangdale H., Rodnizki J., Ron G., Sasson-Zukran R., Shor A., Silverman I., Tessler M., Vaintraub S., Weissman L. The Soreq Applied Research Accelerator Facility (SARAF): Overview, Research Programs and Plans // Eur. Phys. J. A. 2018. V.54. 91.
- 246. Koay H., Toki H., Fukuda M., Seki R., Hara S., Shima T., Koizumi M., Takashina M., Morimoto N. Conceptual design of compact-multichanel neutron moderator for accelerator based BNCT system // Proc. 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Sapporo, Japan, 1–3 Aug. 2017. PASJ2017 WEP124.
- 247. Ishiyama S., Baba Y., Fujii R., Nakamura M., Imahori Y. Thermal Stability of BNCT Neutron Production Target Synthesized by In-Situ Lithium Deposition and Ion Implantation // Mater. Transactions. 2013. V.54, №9. P. 1760–1764.
- 248. Brown A. The design and testing high power lithium target for acceleratorbased boron neutron capture therapy // Research and development in neutron capture therapy / W. Sauerwein, R. Moss, A. Wittig (eds.). Monduzzi Editore, Bologna. 2002. P. 277–282.
- 249. Кононов В.Н., Боховко М.В., Кононов О.Е., Соловьев А.Н. Источник эпитепловых нейтронов на основе ускорителя для нейтронозахватной терапии // АЭ. 2004. Т. 97, № 3. С. 195.
- 250. Willis C., Lenz J., Swenson D. High-power lithium target for acceleratorbased BNCT // Proc. XXIV Linear Accelerator Conf., Victoria, British Columbia, Canada, 29 Sept. – 3 Oct. 2008. 2008. P. 223–225.
- 251. Yoshioka M. Review of accelerator-based boron neutron capture therapy machines // Proc. IPAC2016, Busan, Korea, 2016. THXB01.
- 252. ICDD. Powder Diffraction File, PDF-2/Release 2016; Intern. Centre for Diffraction Data: Newtown Square, PA, USA. 2016.
- 253. Kraus W., Nolze G. POWDER CELL A program for the representation and manipulation of crystal structures and calculation of the resulting X-ray powder patterns // J. Appl. Crystallogr. 1996. V. 29. P. 301–303.
- 254. *Waite T.*, *Wallace W.*, *Craig R*. Structures and phase relationships in the Tantalum-Hydrogen system between −145 and 70 °C // J. Chem. Phys. 1956. V. 24. P. 634–635.
- 255. Panchenko A., Tolstykh N., Gromilov S. The technique of X-ray diffraction investigation of crystal aggregates // J. Struct. Chem. 2014. V.55, №7. P. 1209-1214.
- 256. *Brown A*. Development of high-power producing lithium target for Boron Neutron Capture Therapy. Ph. D Thesis, Univ. of Birmingham, UK, 2000.

- 257. Going down in History: China Reaches a New Milestone to Develop an Advanced In-Hospital BNCT Solution for Clinical Use https://isnct.net/ blog/2023/03/08/newsletter-19/
- 258. Zahl P., Cooper F. Localization of lithium in tumor tissue as a basis for slow neutron therapy // Science. 1941. V. 93. P. 64–65.
- 259. *Luessenhop A., Sweet H., Robinson J.* Possible use of the neutron capturing isotope Lithium-6 in the radiation therapy of brain tumors // Am. J. Roent-genol. 1956. V. 76. P. 376–392.
- 260. *Rendina L.* Can Lithium Salts Herald a New Era for Neutron Capture Therapy? // J. Med. Chem. 2010. V. 53. P. 8224-8227.
- 261. *Gorkin R., Richelson E.* Lithium ion accumulation by cultured glioma cells // Brain Res. 1979. V. 171. P. 365–368.
- 262. Wangqiang L., Hejian T., Fengli S., Weidong J. Preventive Effects of Lithium Carbonate on Antidepressant-Induced Switch During Depressive Episodes: Chinese Data Analysis // Altern. Ther. Health Med. 2022. V. 28, № 1. P. 58-64.
- 263. Fountoulakis K.N., Tohen M., Zarate C.A. Jr. Lithium treatment of Bipolar disorder in adults: A systematic review of randomized trials and metaanalyses // Eur Neuropsychopharmacol. 2022. V. 54. P. 100–115.
- 264. Oruch R., Elderbi M.A., Khattab H.A., Pryme I., Lund A. Lithium: a review of pharmacology, clinical uses, and toxicity // Eur. J. Pharmacol. 2014, V. 740. P. 464–473.
- 265. *Kakhki S., Ahmadi-Soleimani S.M.* Experimental data on lithium salts: From neuroprotection to multi-organ complications // Life Sci. 2022. V. 306. 120811.
- 266. Carpano M., Perona M., Rodriguez C., Nievas S., Olivera M., Santa Cruz G., Brandizzi D., Cabrini R., Pisarev M., Juvenal G., Dagrosa M. Experimental studies of Boronophenylalanine ((10)BPA) biodistribution for the individual application of boron neutron capture therapy (BNCT) for malignant melanoma treatment // Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 2015. V. 93, № 2. P. 344–352.
- 267. Yoshida F., Kurita T., Endo K., Nakai K., Shirakawa M., Zaboronok A., Tsurubuchi T., Ishikawa E., Matsumira A. Difference in BPA uptake between glioma stem-like cells and their cancerous cells // Appl. Radiat. Isot. 2020. V. 164. 109234.
- 268. *Gitlin M*. Lithium side effects and toxicity: prevalence and management strategies // Int. J. Bipolar. Disord. 2016. V. 4. 27.
- 269. Taskaeva I., Kasatova A., Surodin D., Bgatova N., Taskaev S. Study of Lithium Biodistribution and Nephrotoxicity in Skin Melanoma Mice Model: The First Step towards Implementing of Lithium Neutron Capture Therapy // Life. 2023. V. 13. 518.

Научное издание

ТАСКАЕВ Сергей Юрьевич

#### УСКОРИТЕЛЬНЫЙ ИСТОЧНИК НЕЙТРОНОВ VITA

#### Редактор *Е.И. Ворошилова* Оригинал-макет: *И.Г. Андреева* Оформление переплета: *В.Ф. Киселев*

Подписано в печать 24.11.23. Формат 60×90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная. Усл. печ. л. 15,5 + 0,5 цв. вкл. Уч.-изд. л. 17,1 + 0,55 цв. вкл. Тираж 300 экз. Заказ №

Издательская фирма «Физико-математическая литература» 117342, г. Москва, ул. Бутлерова, д. 17Б E-mail: porsova@fml.ru, sale@fml.ru Caйт: http://www.fml.ru Интернет-магазин: http://www.fmllib.ru

Отпечатано с электронных носителей издательства в АО «Первая Образцовая типография» Филиал «Чеховский Печатный Двор» 142300, Московская область, г. Чехов, ул. Полиграфистов, д. 1 Сайт: www.chpd.ru. E-mail: sales@chpd.ru, тел.: 8 (499) 270-73-59