

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера
Сибирского отделения Российской академии наук

На правах рукописи

КАСАТОВ Дмитрий Александрович

**ИССЛЕДОВАНИЕ МАТЕРИАЛОВ
НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩЕЙ МИШЕНИ
ДЛЯ БОР-НЕЙТРОНОЗАХВАТНОЙ ТЕРАПИИ**

1.3.18. Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель
доктор физико-математических наук
Таскаев Сергей Юрьевич

г. Новосибирск

2021

Оглавление

ВВЕДЕНИЕ.....	3
ГЛАВА 1 НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩАЯ МИШЕНЬ ДЛЯ БОР- НЕЙТРОНОЗАХВАТНОЙ ТЕРАПИИ.....	10
§ 1.1. ОСНОВЫ БОР-НЕЙТРОНОЗАХВАТНОЙ ТЕРАПИИ ЗЛОКАЧЕСТВЕННЫХ ОПУХОЛЕЙ	10
§ 1.2. ОБЗОР НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩИХ МИШЕНЕЙ	15
§ 1.3. РЕЗЮМЕ	26
ГЛАВА 2 ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ПРОТОНОВ С ЛИТИЕМ И С КОНСТРУКЦИОННЫМИ МАТЕРИАЛАМИ ..	28
§ 2.1. ПРОЦЕССЫ, ПРИВОДЯЩИЕ К ИЗЛУЧЕНИЮ ПРИ ПОГЛОЩЕНИИ ПРОТОНОВ В МЕТАЛЛАХ.....	29
§ 2.2. ИЗМЕРЕНИЕ МОЩНОСТИ ДОЗЫ γ -ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ПОГЛОЩЕНИИ 2 МЭВ ПРОТОНОВ В КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ	31
§ 2.2. ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЯ РЕАКЦИИ ${}^7\text{Li}(p,\text{p}'\gamma){}^7\text{Li}$ И ВЫХОДА γ -КВАНТОВ ИЗ ТОЛСТОЙ ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ	43
§ 2.4. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ПРИМЕНЕНИЯ ТОНКОЙ ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ ДЛЯ ПОДАВЛЕНИЯ ПОТОКА 478 КЭВ ФОТОНОВ ИЗ РЕАКЦИИ ${}^7\text{Li}(p,\text{p}'\gamma){}^7\text{Li}$	60
§ 2.5. ВЫВОДЫ	62
ГЛАВА 3 РАДИАЦИОННЫЙ БЛИСТЕРИНГ МЕТАЛЛОВ ПРИ ИМПЛАНТАЦИИ 2 МЭВ ПРОТОНОВ	63
§ 3.1. ОБЗОР ИССЛЕДОВАНИЙ ПО РАДИАЦИОННОМУ БЛИСТЕРИНГУ	65
§ 3.2. СТЕНД ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ	70
§ 3.3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ. СЕРИЯ I.....	73
§ 3.4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ. СЕРИЯ II	81
§ 3.5. ОБОБЩЕНИЕ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ	104
§ 3.6. ВЫВОДЫ	107
ГЛАВА 4 ГЕНЕРАЦИЯ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ НАУЧНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ	110
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	118
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	121
ПРИЛОЖЕНИЕ.....	139

Введение

По данным Всемирной организации здравоохранения распространённость онкологических заболеваний и, как следствие, смертность от них неуклонно растут. Так, в США, Японии и других развитых странах злокачественные опухоли являются непосредственной причиной смерти в более чем 25 % случаев, в то время как 70 лет назад – менее 10%. Разработка лекарств и методов лечения злокачественных опухолей – важная и до сих пор не решённая научная задача.

Одна из перспективных методик лечения злокачественных опухолей – бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) [1, 2] – избирательное уничтожение клеток опухоли путём накопления в них стабильного изотопа бор-10 и последующего облучения эпитепловыми нейтронами. В результате поглощения нейтрона бором происходит ядерная реакция $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ с большим выделением энергии именно в той клетке, которая содержала ядро бора, что приводит к её гибели. Клинические испытания методики проведены на ядерных реакторах и получены положительные результаты. Для широкого внедрения методики в клиническую практику требуются компактные источники нейтронов на основе ускорителей заряженных частиц, обеспечивающие плотность потока 10^9 нейтронов/(см² с) в узком энергетическом интервале энергией от 1 до 30 кэВ. Неотъемлемой частью ускорительного источника нейтронов является нейтроногенерирующая мишень, которая должна обеспечить длительную эффективную генерацию нейтронов с как можно меньшим сопутствующим потоком γ -излучения и быть слабо активируемой,

насколько это возможно. Присутствие в терапевтическом пучке быстрых, медленных нейтронов и γ -квантов, приводящих к дополнительной нелокализованной дозе облучения, нежелательно. Высокие требования к терапевтическому пучку нейтронов, от выполнения которых зависит качество терапии больных и комфортность работы персонала, делают задачу создания оптимальной для БНЗТ нейтроногенерирующей мишени чрезвычайно **актуальной**.

Степень разработанности проблемы. Для БНЗТ в основном рассматривают две пороговые реакции: ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ [3, 4], и разрабатывают два типа мишеней: литиевую или бериллиевую. Основное требование к мишени – обеспечить поток нейтронов высокой интенсивности с как можно меньшей энергией нейтронов с тем, чтобы с применением замедлителя, отражателя и фильтров сформировать терапевтический пучок эпитепловых нейтронов, пригодный для проведения бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей. В настоящее время в мире разрабатывают различные типы мишеней: литиевые или бериллиевые, твердые или жидкие, стационарные, струйные или вращающиеся, одно-, двух-, трёх- или четырёхслойные. Разнообразие подходов обусловлено не только сложностью задачи, но и отсутствием достоверных данных о ряде процессов при специфических условиях, в частности, о пороге образования блистеров в металлах при имплантации протонов с энергией 2 МэВ, из-за чего выбор мишени зачастую определяется имеющимся опытом.

Целью работы является получение научных знаний об излучении и радиационном повреждении металлов при имплантации протонов с энергией 2 МэВ и выбор оптимальных материалов нейтроногенерирующей мишени для БНЗТ, минимально излучающих при поглощении в них протонов с энергией ниже порога генерации нейтронов, стойких к радиационным повреждениям и слабо активируемых нейтронами. Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие **задачи**:

1. Разработать стенд для облучения различных конструкционных материалов пучком протонов и измерить мощность дозы и спектр рентгеновского и γ -излучения, мощность дозы нейтронного излучения, спектр излучения остаточной активности, сечение реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и выход γ -квантов из толстой литиевой мишени. Определить, во сколько раз можно снизить нежелательную дозу γ -излучения, используя тонкую литиевую мишень без уменьшения выхода нейтронов.

2. Разработать стенд для изучения блистеринга поверхности металлов при имплантации протонов, провести наблюдение за процессом образования радиационных повреждений на поверхности исследуемых металлов и определить порог образования блистеров.

3. Измерить спектр активированной мишени после генерации нейтронов и определить процессы, приводящие к активации мишени нейтронами.

4. Провести анализ полученных результатов и предложить набор материалов, оптимальных для применения в конструкции нейтроногенерирующей мишени ускорительного источника эпитепловых нейтронов коммерческого класса для проведения БНЗТ.

Научная новизна работы заключается в следующем.

Измерена мощность дозы и спектр рентгеновского и γ -излучения, мощность дозы нейтронного излучения и спектр излучения остаточной активности при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в графите, алюминии, титане, ванадии, нержавеющей стали, меди, молибдене и тантале.

С высокой точностью измерено сечение реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ при энергии протонов от 0,64 до 2,1 МэВ.

Впервые измерена зависимость выхода 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени от энергии протонов в диапазоне энергий от 0,65 до 2,225 МэВ.

На основе полученных экспериментальных данных впервые определено, во сколько раз применение тонкой литиевой мишени по сравнению с толстой¹ снижает нежелательную при БНЗТ дозу γ -излучения без уменьшения выхода нейтронов.

С применением CCD-камеры и удаленного микроскопа впервые осуществлено *in-situ* наблюдение динамики образования блистеров на поверхности меди и тантала при их облучении пучком 2 МэВ протонов. С применением рентгеновского дифрактометра, лазерного и электронных микроскопов проведено исследование поверхности облученных образцов. Определен порог образования блистеров. Обращено внимание на то, что 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. Измерено увеличение температуры поверхности тантала по мере накопления флюенса, что может быть связано с уменьшением теплопроводности за счет появления полостей и внедрения водорода в кристаллическую структуру тантала.

Методологической основой диссертационного исследования являются экспериментальные методы исследования, включая моделирование и экспериментальное исследование свойств металлов при облучении протонами и нейтронами, и применение метода сравнения для выявления их сходств и различий.

Основная теоретическая и практическая значимость диссертационной работы состоит в том, что получены новые знания о взаимодействии протонов и нейтронов с металлами, а именно: i) определены пороги образования блистеров в меди и тантале при имплантации протонов с энергией 2 МэВ; ii) обнаружено, что после появления блистеров на поверхности меди дальнейшее облучение не приводит к модификации поверхности; iii) установлено, что образование блистеров на медной подложке мишени не приводит к деградации выхода нейтронов; iv)

¹ Термин “толстая литиевая мишень” означает, что протоны поглощаются в литии, “тонкая” – протоны проходят слой лития и поглощаются в подложке, на которую нанесен литий.

измерены мощность дозы и спектр рентгеновского и γ -излучения, мощность дозы нейтронного излучения при поглощении 2 МэВ протонов в различных конструкционных материалах и спектр излучения остаточной активности; v) измерена активация мишени нейтронами; vi) измерено сечение неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития и выход 478 кэВ из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,65 МэВ до 2,225 МэВ.

Полученные знания использованы при изготовлении источника нейтронов для Neutron Xiamen центра БНЗТ (г. Сямынь, провинция Фуцзянь, Китай) [5] – первой клиники БНЗТ в Китае и одной из первых шести клиник БНЗТ в мире, и могут быть использованы при разработке нейтроногенерирующих мишеней других ускорительных источников нейтронов, в том числе для проведения БНЗТ в условиях онкологических клиник. Измеренная зависимость выхода 478 кэВ фотонов от энергии протонов используется для измерения толщины лития [6].

Личный вклад автора в получении научных результатов, лежащих в основе диссертации, является определяющим. При определяющем участии автора разработаны и установлены специальные узлы, подсоединяемые к ускорителю-тандему с вакуумной изоляцией для изучения излучения и радиационных повреждений металлов при их облучении пучком протонов. Автором лично освоены и применены для исследований спектрометры γ -излучения различных типов и активационная методика. Автором лично получены и проанализированы экспериментальные результаты при измерении излучения, возникающего при поглощении протонов в металлах, включая литий, при изучении активации мишени нейтронами. При активном личном участии автора были проведены анализ и обработка результатов исследования блистеринга металлов при имплантации 2 МэВ протонов. Автором написаны соответствующие разделы в опубликованных статьях.

По теме диссертации опубликовано 9 работ, из них 5 в рецензируемых научных журналах из списка ВАК [7-11] и 4 в трудах конференций [12-15]. Все работы проиндексированы в базе данных Скопус (SCOPUS), все 5 работ в

рецензируемых журналах – ещё и в базе данных Сеть науки (Web of Science Core Collection). По теме диссертации получен патент на изобретение [16].

Работы, составляющие материал диссертации, докладывались и обсуждались на научных семинарах в ИЯФ СО РАН и РФЯЦ-ВНИИТФ (Снежинск). Материалы диссертации в виде 17 докладов обсуждались на 10 международных и 4 российских конференциях [12-28]: 9-й Международной конференции по ускорителям заряженных частиц (Ванкувер, Канада, 2018), XXIV и XXV Всероссийских конференциях по ускорителям заряженных частиц (Обнинск, 2014; Санкт-Петербург, 2016), 7-ой, 8-й и 9-й Школах молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Гранада, Испания, 2013; Павия, Италия, 2015; Киото, Япония, 2017), XVII и XVIII Международных конгрессах по нейтрон-захватной терапии (Колумбия, США, 2016; Тайпей, Тайвань, 2018), Международной конференции биомедицинской инженерии и компьютерных технологий (Новосибирск, 2015), XV Международном конгрессе по радиационным исследованиям (Киото, Япония, 2015), XIII Забабахинских научных чтениях (Снежинск, 2017), XIII Симпозиуме по дозиметрии нейтронов и ионов (Краков, Польша, 2017), III Научно-практической конференции "Наука. Медицина. Инновации" (Новосибирск, 2020).

Автор по результатам рассмотрения аннотаций докладов получил трэвел-грант для участия в работе 9-й Школы молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Киото, Япония, 2017). Работа автора в соавторстве победила на 54-й Международной научной студенческой конференции в Новосибирске в 2016 г.

Исследования поддержаны Министерством образования и науки РФ (Соглашение № 14.604.21.0066, 2014-2016), Российским научным фондом (Соглашения № 16-32-00006, 2014-2018 и № 19-72-30005, 2019-2022), Институтом науки и технологий Окинавы, Япония (Соглашение о сотрудничестве, 2017-2018), компанией TAE Technologies, Inc., США (контракт № 17-132, 2017-2020) и персональной стипендией Президента Российской Федерации (2021-2023).

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Измерено сечение реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,65 МэВ до 2,225 МэВ. Установлено, что применение тонкой литиевой мишени по сравнению с толстой уменьшает нежелательный для бор-нейтронозахватной терапии поток фотонов из реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ без уменьшения выхода нейтронов от 4 раз при энергии протонов 2 МэВ до 2 раз при 2,3 МэВ.

2. Порог образования и размер блистеров на поверхности меди зависят от чистоты меди, в более чистой меди они больше. При энергии протонов 2 МэВ и температуре меди 150 °С максимальное значение порога составляет величину $3 \pm 0,3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, минимальное в 7 раз меньше; средний размер блистеров варьируется от 40 до 160 мкм. После появления блистеров дальнейшее облучение до флюенса, в 4 раза превышающего порог блистерообразования, не приводит к видимой модификации поверхности. Тантал значительно более устойчив к образованию блистеров, чем медь. При энергии протонов 2 МэВ блистеры в виде пузырей или чешуек не появляются до флюенса $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$. При флюенсе $3,6 \pm 0,4 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ происходит модификация поверхности в виде рельефа с характерным размером ячеек 1 мкм.

3. Замена нержавеющей стали на алюминий в узле литиевой мишени с медной подложкой приводит к 20-кратному уменьшению наведенной радиоактивности до уровня радиоактивности бериллия-7, образующегося в реакции генерации нейтронов.

Глава 1

Нейтроногенерирующая мишень для бор-нейтронозахватной терапии

В Главе 1 приведены основы бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей, представлен обзор предложенных и разрабатываемых мишеней для генерации нейтронов, сформулированы основные требования, предъявляемые к мишени, уточнены цели и задачи диссертационной работы, обоснован выбор энергии протонов для проведения исследований.

§ 1.1. Основы бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей

Бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) является формой бинарной радиотерапии, использующей высокую способность нерадиоактивного ядра бор-10 поглощать тепловой нейтрон. Сечение реакции поглощения нейтрона $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ равно 3835 б для теплового нейтрона и уменьшается обратно пропорционально увеличению скорости нейтрона. Поглощение нейтрона бором приводит к мгновенной ядерной реакции с выделением энергии 2,79 МэВ. В 6,1 % случаев энергия распределяется только между ядром лития и α -частицей, в 93,9 % случаев ядро лития вылетает в возбуждённом состоянии и испускает γ -квант с энергией

0,48 МэВ. Продукты ядерной реакции, ядро лития с энергией 0,84 МэВ и α -частица с энергией 1,47 МэВ быстро тормозятся на размере клетки, в то время как длина пробега γ -кванта превышает 20 см, следовательно, выделение основной части энергии ядерной реакции $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, 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 американским рентгенологом Г. Лочером в 1936 г. [29], вскоре после открытия сэром Дж. Чадвиком нейтрона в 1932 г. [30] и описания Н. Тэйлором и М. Голдхабером реакции $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ [31].

В развитии методики БНЗТ общепринято выделять четыре периода [1].

Первые клинические испытания были проведены в 1950-е гг. на специально построенных ядерных реакторах в Массачусетсе и Брукхейвене (США) [32, 33]. Они не продемонстрировали терапевтическую эффективность метода [34, 35], вероятнее всего из-за слабой селективности и низкой концентрации бора применяемой для этих исследований борной кислоты.

Второй период, с 1968 по конец 80-х гг., связан с работами японского доктора Х. Хатанака, который стал применять внутриартериальную инъекцию синтезированного боркаптата натрия [36] и проводить открытое облучение опухоли после хирургического удаления большей части опухоли. Он добился впечатляющих результатов – 5-летняя выживаемость составила 58 % для группы пациентов со злокачественными глиомами 3 и 4 степеней [37]. В 1987 г. доктор Ю. Мисима осуществил лечение поверхностной злокачественной меланомы, применив новый препарат адресной доставки бора – борфенилаланин [38].

Эти результаты инициировали третий период развития нейтронозахватной терапии. На многих ядерных реакторах стали проводиться клинические испытания лечения глубоких внутримозговых опухолей с применением пучков эпитепловых

нейтронов. Терапия пациентов была проведена в США [39, 40], в Голландии [41], Финляндии [42], Швеции [43], Чехии [44], Японии [45], Аргентине [46] и Тайване [47]. Положительные результаты были получены в лечении таких опухолей, как глиобластома, меланома, опухоль шеи [44, 48, 49], менингиома [50], мезотелиома плевры [51] и гепатоцеллюлярная карцинома [52]. Но в силу разных причин, в том числе связанных с фобией после аварий на Чернобыльской атомной электростанции и на атомной электростанции Фукусима, практически все ядерные реакторы были закрыты и проведение клинических испытаний прекращено, за одним исключением – по-прежнему по четвергам лечат больных на реакторе Института реакторных исследований Университета Киото (Япония).

В настоящее время исследования по БНЗТ переходят в следующий, четвертый период [1], связанный с использованием ускорителей заряженных частиц для получения пучков эпитепловых нейтронов. Преимущество ускорителей перед реакторами в том, что их можно поставить в клинику и с их применением можно сформировать пучок эпитепловых нейтронов, лучше удовлетворяющий требованиям БНЗТ. Сейчас в мире строятся 6 клиник БНЗТ, оснащаемых разными типами ускорителей заряженных частиц и разными вариантами мишеней.

Первая клиника БНЗТ построена на территории клиники Южного Тохоку (Корияма, префектура Фукусима, Япония). Для этой клиники японская компания Sumitomo Heavy Industries (SHI) изготовила и установила циклотрон на энергию 30 МэВ и ток 1 мА с бериллиевой мишенью [53]. Этот источник нейтронов подобен тому [54-56], что они изготовили и ввели в эксплуатацию на площадке в Куматори Института реакторных технологий Университета Киото (KURRI) в 2009 г. На этом источнике SHI совместно с компанией Stella Pharma Corp. в сотрудничестве с KURRI, Медицинским колледжем Осака и Медицинской школой Кавасаки с 2012 г. по 2016 г. успешно прошли первую фазу клинических испытаний лечения опухолей головного мозга и рака головы и шеи. Затем эти организации и присоединившиеся к ним больница Южного Тохоку и Национальный онкологический центр Японии инициировали в 2016 г. II фазу [57]. В течение 2016-

2018 гг. проведено облучение 21 пациента с большими опухолями головы и шеи [58].

Параллельно на площадке в Куматори в течение 2016-2018 гг. персоналом Медицинского колледжа Осака (Япония) и Института реакторных технологий Университета Киото проведено облучение 27 пациентов с глиобластомой мозга [59].

Результаты наблюдения за состоянием всех пациентов были представлены в Министерство здравоохранения, труда и социального обеспечения и в марте 2020 г. компания SHI получила лицензию на проведение БНЗТ с применением разработанного оборудования [60].

С 1 июня 2020 г. в БНЗТ клинике Южного Тохоку (префектура Фукусима, Япония) и в построенном БНЗТ центре Медицинского колледжа Осака (Япония) началось клиническое БНЗТ с покрытием расходов за счет средств медицинского страхования [61]. Предполагается, что со временем в этих центрах будут лечить по 600 пациентов в год.

Третья клиника БНЗТ практически построена в г. Токай (префектура Ибараки, Япония), недалеко от JAERI – Японского научно-исследовательского института по атомной энергии. Для этой клиники Университет Цукубы (Япония) совместно с компанией Mitsubishi Heavy Industries Ltd. и научными организациями КЕК (Организация по изучению высокоэнергетических ускорителей, Цукуба, Япония) и JAERI изготовили и запустили в эксплуатацию 8 МэВ линак с проектным током 5 мА, оснащенный бериллиевой мишенью [62, 63]. К настоящему времени достигнут ток протонного пучка 2,8 мА. Они планируют приступить к лечению меланомы, на что получено разрешение от Министерства здравоохранения, труда и социального обеспечения.

Четвертая клиника БНЗТ построена на территории Национального онкологического центра в Токио. Здесь используется 2,5 МэВ линак на ток 20 мА [64], сделанный дочерним предприятием Hitachi – компанией AccSys Technology, Inc. (Калифорния, США), и литиевая мишень [65], изготовленная компанией Linac

Systems (США). К настоящему времени получен протонный пучок с током 11 мА, и, как и центр в Токае, они планируют также приступить к лечению меланомы.

Стоит отметить, что автор диссертации в ноябре 2017 г. посетил 3 центра, а именно, SHI центр на площадке в Куматори, клинику БНЗТ в Токае и Национальный онкологический центр в Токио.

Пятая клиника БНЗТ построена на территории клиники Университета Хельсинки (Финляндия) [66]. Для этой клиники компания Neutron Therapeutics (Данверс, Массачусетс, США) изготовила 2,6 МэВ 30 мА электростатический ускоритель прямого действия [67, 68] с вращающейся литиевой мишенью.

Шестая клиника БНЗТ построена в г. Сямынь (провинция Фуцзянь, Китай). Для этой клиники по заказу компании Neuboron Medtech Ltd. (Нанкин, Китай) Институт ядерной физики СО РАН совместно с компанией TAE Life Science (Лейк Форест, Калифорния, США) изготовил, протестировал и в сентябре 2020 г. отправил 2,5 МэВ 10 мА ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией и литиевую мишень, подобные предложенным [69] и работающим в ИЯФ СО РАН [70, 71]. В этой клинике планируют лечить до 3000 больных в год.

§ 1.2. Обзор нейтроногенерирующих мишеней

Задача создать ускорительный источник нейтронов для клиники БНЗТ была поставлена 30 лет тому назад [72-74], и с тех пор было предложено множество разнообразных проектов. В проектах рассматривались как различные типы ускорителей заряженных частиц: от высоковольтных электростатических прямого действия или тандемных до радиочастотных линаков или циклотронов, так и различные мишени для генерации нейтронов: дейтериевая, тритиевая, литиевая, бериллиевая или углеродная. Со временем, по мере достижения успехов в разработке сильноточных ускорителей заряженных частиц, выбор среди реакций свёлся к двум: ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ или ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$, поскольку их реализация может обеспечить наилучшее качество терапевтического пучка за счёт низкой энергии генерируемых нейтронов [3, 4]. Из этих двух реакций наилучшей признается ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из-за максимального выхода и минимальной энергии нейтронов (Рис. 1).

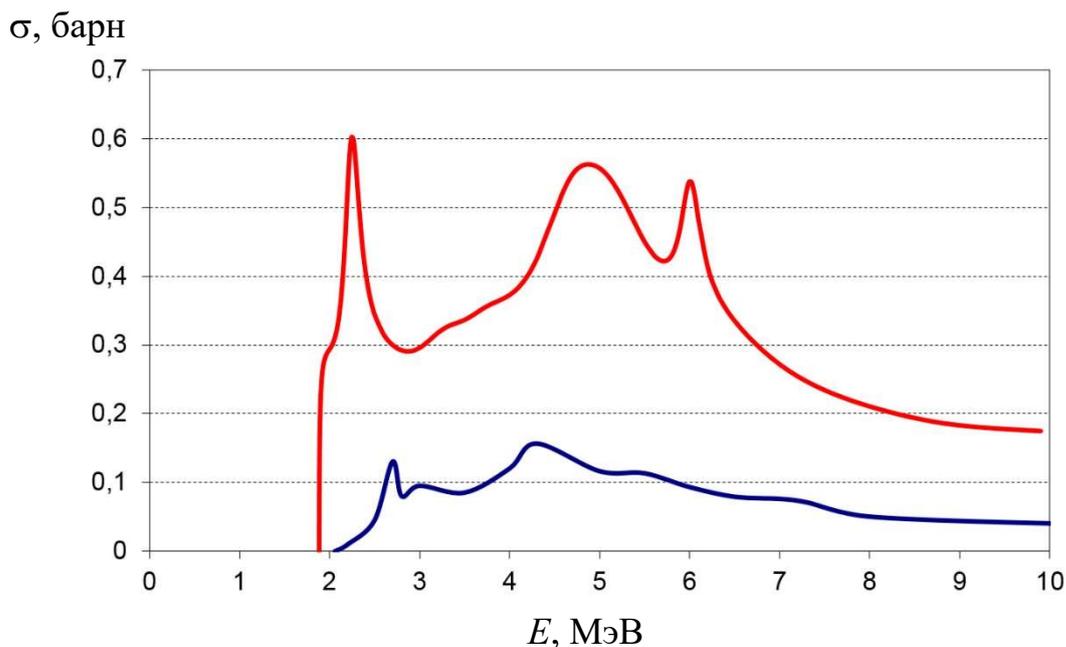


Рис. 1. Зависимость сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ (верхняя кривая) и ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ (нижняя кривая) от энергии протонов E .

Однако создание литиевой мишени казалось проблематичным из-за низкой температуры плавления, низкой теплопроводности и высокой химической активности лития [3, стр. 23]. Возможно, по этой причине ряд исследователей сосредоточились на применении бериллиевой мишени, из-за чего для достижения требуемого выхода нейтронов необходимо было использовать ускорители протонов с относительно высокой энергией.

Так, в проекте C-BENS (циклотронный источник эпитепловых нейтронов) компании SHI бериллиевая мишень [56] сделана в виде диска толщиной 5,5 мм, за которым размещена медная подложка со спиралевидными каналами для протекания охлаждающей воды (Рис. 2). Пучок протонов диаметром 80 мм разворачивается сканером по мишени диаметром 160 мм. Стоит обратить внимание на элегантное решение, позволившее избавиться от радиационного блистеринга: толщину бериллиевого диска (5,5 мм) сделали меньше длины торможения 30 МэВ протона в бериллии, которая равна 5,8 мм, так что протоны пролетают сквозь бериллий и поглощаются в воде, которая охлаждает обратную сторону бериллиевого диска.

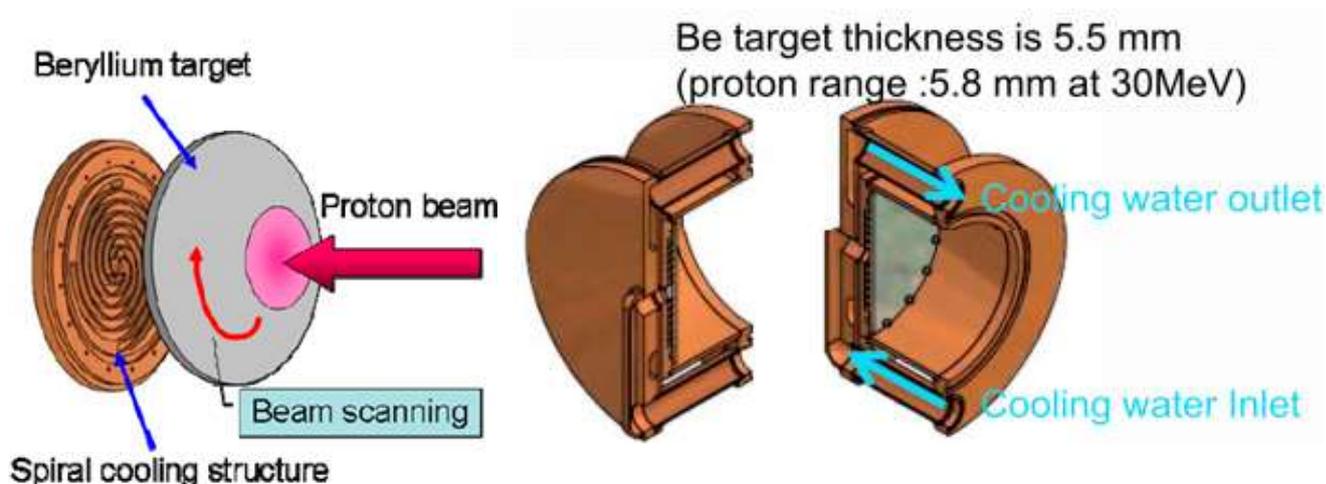


Рис. 2. Бериллиевая мишень проекта C-BENS.

В Национальной лаборатории Линьяро (Падуа, Италия) разрабатывается гигантский проект SPES-1 по получению экзотических радиоактивных ионных пучков путём облучения ^{238}U быстрыми нейтронами, получаемыми при сбросе 100 МэВ 1 мА протонного пучка на бериллиевую мишень. Предполагается в ускорительном тракте сделать ответвление и использовать 5 МэВ 30 мА протонный пучок для разных приложений, в том числе и для БНЗТ [75]. Бериллиевая мишень состоит из двух частей (Рис. 3) [76]. Каждая часть мишени сделана из десяти наборов бериллиевых плиток, которые припаяны к медным охлаждающим трубкам. Обе части мишени размещены под небольшим углом к пучку с тем, чтобы увеличить площадь взаимодействия и уменьшить плотность нагрева мишени.

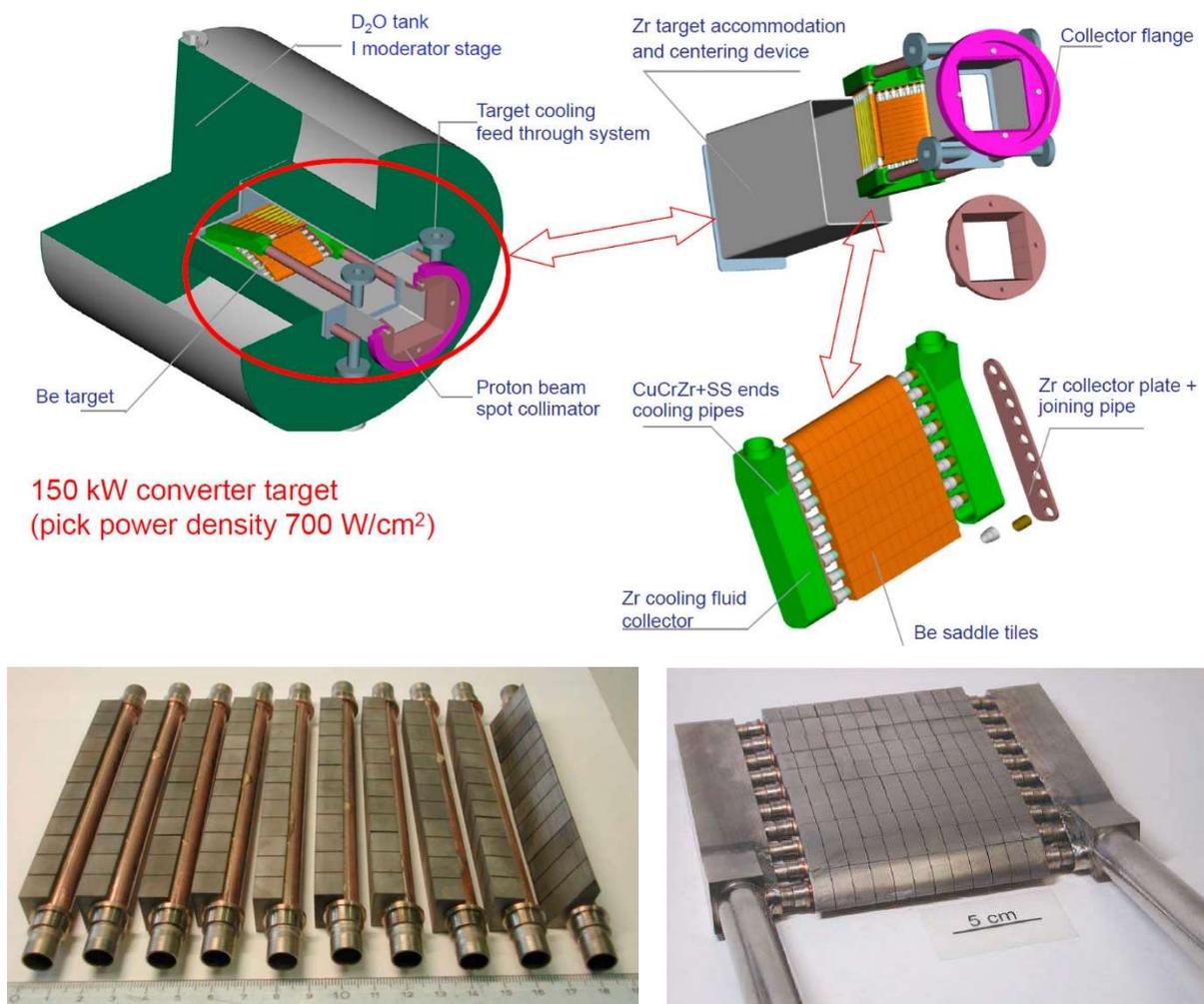


Рис. 3. Бериллиевая мишень Национальной лаборатории Линьяро (Италия).

В проекте *i-BNCT* (буква *i* указывает на первую букву в названии префектуры Ибараки) клиники к г. Токай используется бериллиевая мишень. Между бериллиевым нейтроногенерирующим слоем диаметром 150 мм толщиной 0,5 мм и теплоотводящей медной подложкой размещен пластина тантала толщиной 0,5 мм для поглощения протонов, поскольку тантал более стоек к радиационным повреждениям, чем медь (Рис. 4).

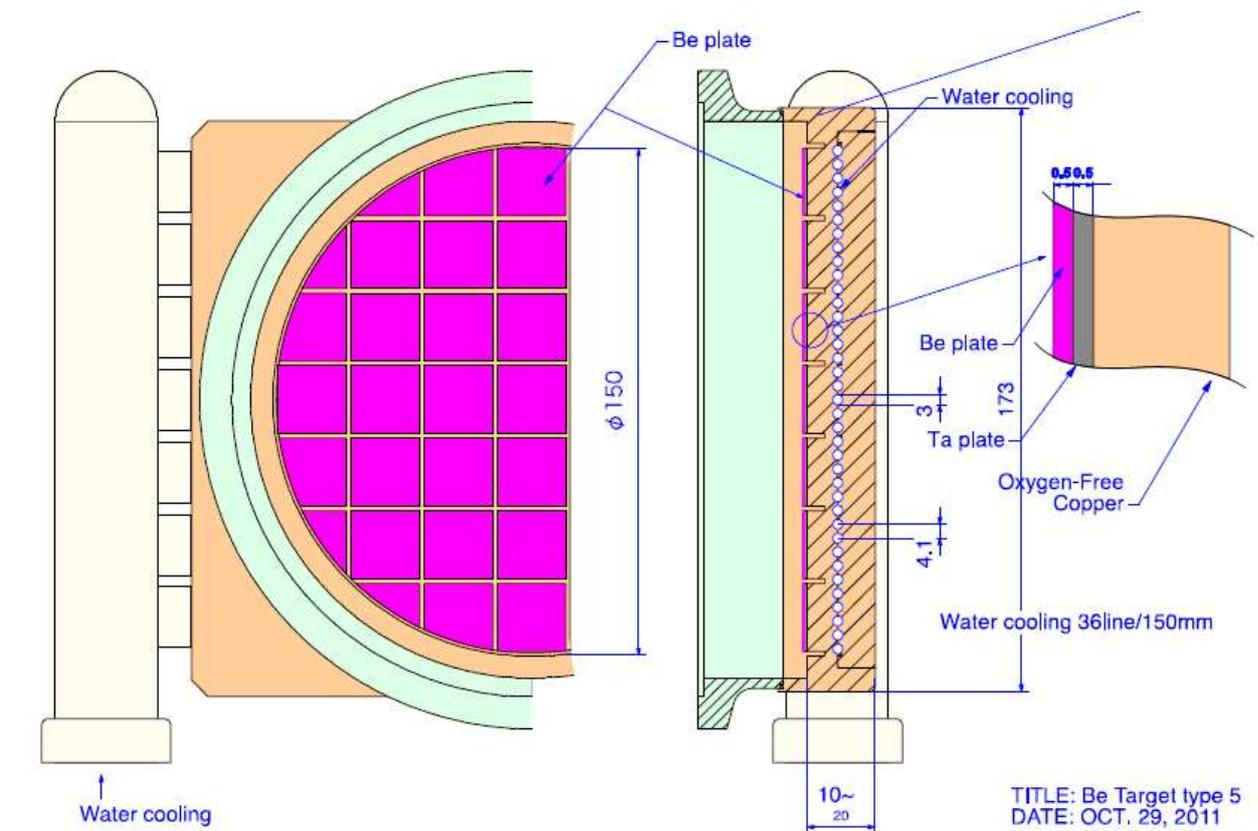


Рис. 4. Бериллиевая мишень проекта *i-BNCT* (фотография мишени сделана автором во время посещения установки в ноябре 2017 г.).

Перейдем к обзору литиевых мишеней.

В Физико-энергетическом институте (Обнинск) для использования на каскадном генераторе КГ-2,5 [77] с энергией протонов 2,5 МэВ была разработана литиевая мишень, представляющая собой никелевый стакан диаметром 50 мм, на дне которого расплавляется литий толщиной порядка 0,5 мм (Рис. 5). Мишень охлаждается водой, текущей по 90 никелевым трубочкам диаметром 0,55 мм с толщиной стенок 0,05 мм, припаянным к дну стакана.

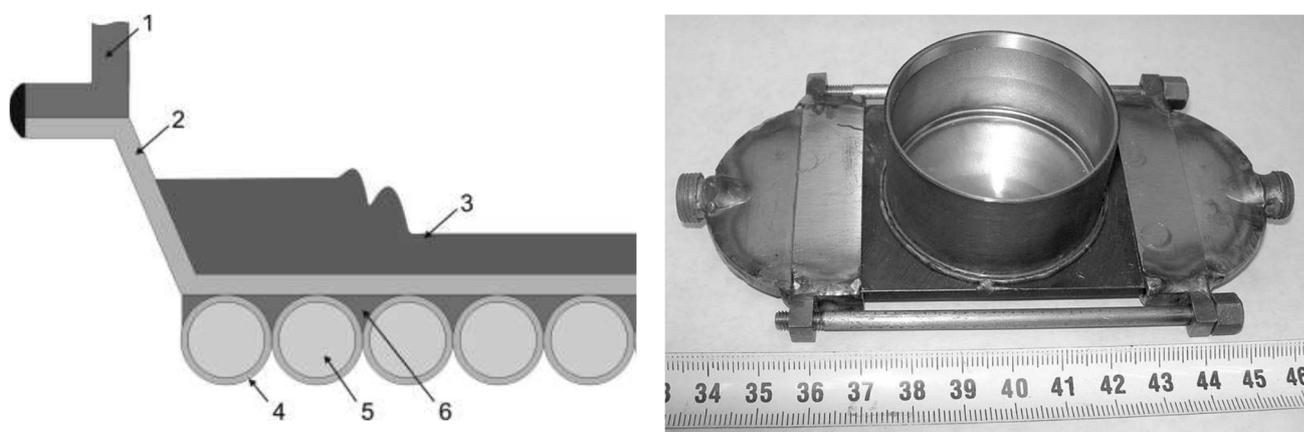
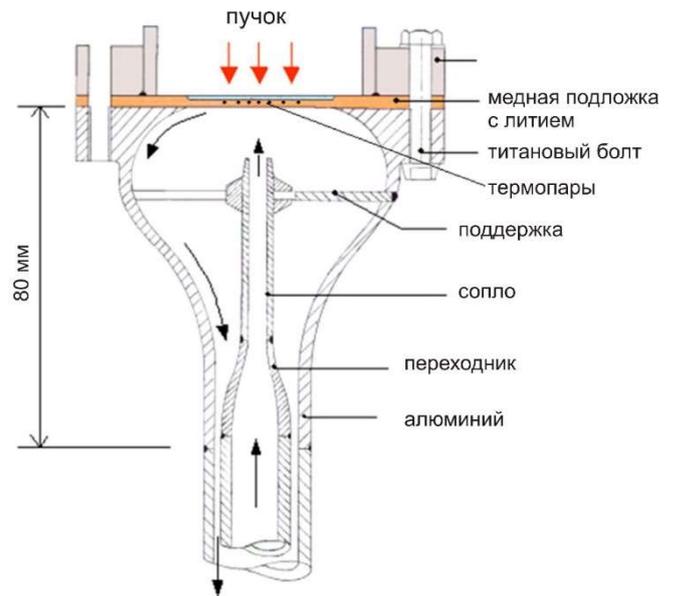


Рис. 5. Литиевая мишень на КГ-2,5: 1 – стакан, 2 – корпус, 3 – литий, 4 – трубочки, 5 – вода, 6 – серебряный припой.

В Бирмингеме (Англия) длительное время работает Динамитрон на энергию 2,8 МэВ с током до 1,25 мА [78], в том числе и для проведения исследований в области БНЗТ. Для генерации нейтронов применяется мишень, представляющая собой медную подложку, на которую со стороны протонного пучка нанесен литиевый слой диаметром 38 мм, толщиной 0,7 мм (Рис. 6а). Обратная поверхность медной подложки охлаждается струей тяжелой воды, как показано на Рис. 6б.



а



б

Рис. 6. Литиевая мишень в Бирмингеме: фотография (а), схема системы охлаждения (б).

Бельгийская компания Ion Beam Application (ИВА) в 2014 г. поставила в Университет Нагоя (Япония) Динамитрон на энергию 2,8 МэВ и ток 15 мА. Университет Нагоя разработал многослойную литиевую мишень: теплоотводящий медный слой с каналами для охлаждения, танталовый слой толщиной 0,5 мм для поглощения протонов, литиевый слой толщиной 140 мкм для генерации нейтронов и титановая фольга толщиной 5-10 мкм для предотвращения распыления лития при нагреве. Такая конструкция обусловлена тем, что медь является наилучшим проводником тепла, наряду с золотом и серебром; тантал, так же, как и ванадий, может обеспечить длительный срок эксплуатации, поскольку в наибольшей степени стоек к радиационному блистерингу [79]; литий – наилучший для генерации нейтронов. Конструкция подложки мишени показана на Рис. 7. В танталовом слое толщиной 0,5 мм сделаны углубления, в которые закладывается литий в виде дисков толщиной 140 мкм диаметром 5 мм. Сверху всё закрывается титановой фольгой толщиной 5-10 мкм, которая прикрепляется к танталу методом горячего изостатического прессования.

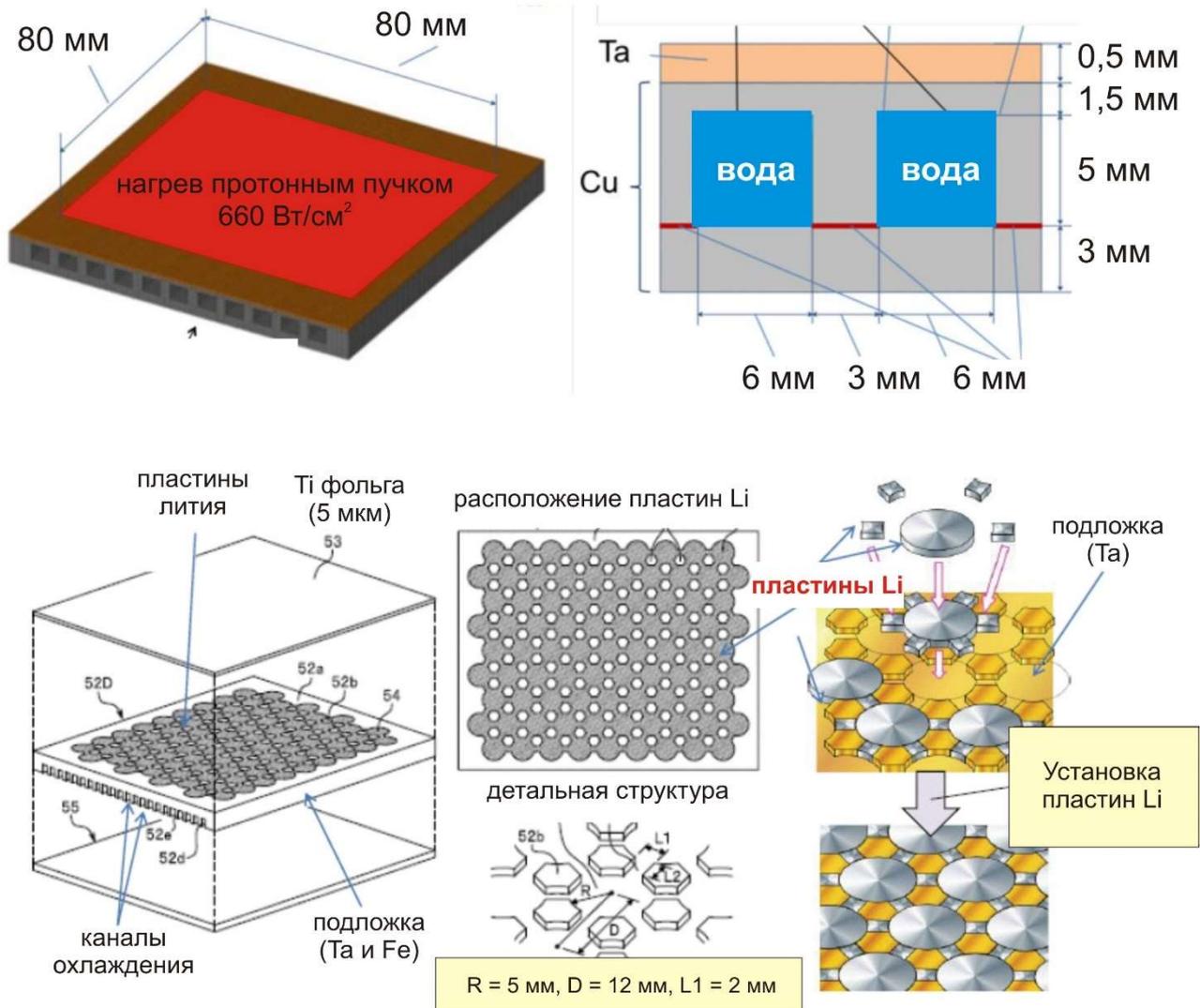


Рис. 7. Конструкция мишени ИВА и схема размещения литевых пластин.

В Национальном онкологическом центре Токио используют конусную литевую мишень, разработанную компанией Linac Systems (Альбукерке, США) [65] (Рис. 8). На медный корпус с 8 спиралевидными каналами охлаждения водой нанесён слой палладия толщиной 10 мкм, а сверху – 50 мкм слой лития, обогащённого изотопом литий-7 до 99,88 %. Фотография облучательной комнаты с системой формирования пучка, внутри которой размещена мишень, приведена на Рис. 9.

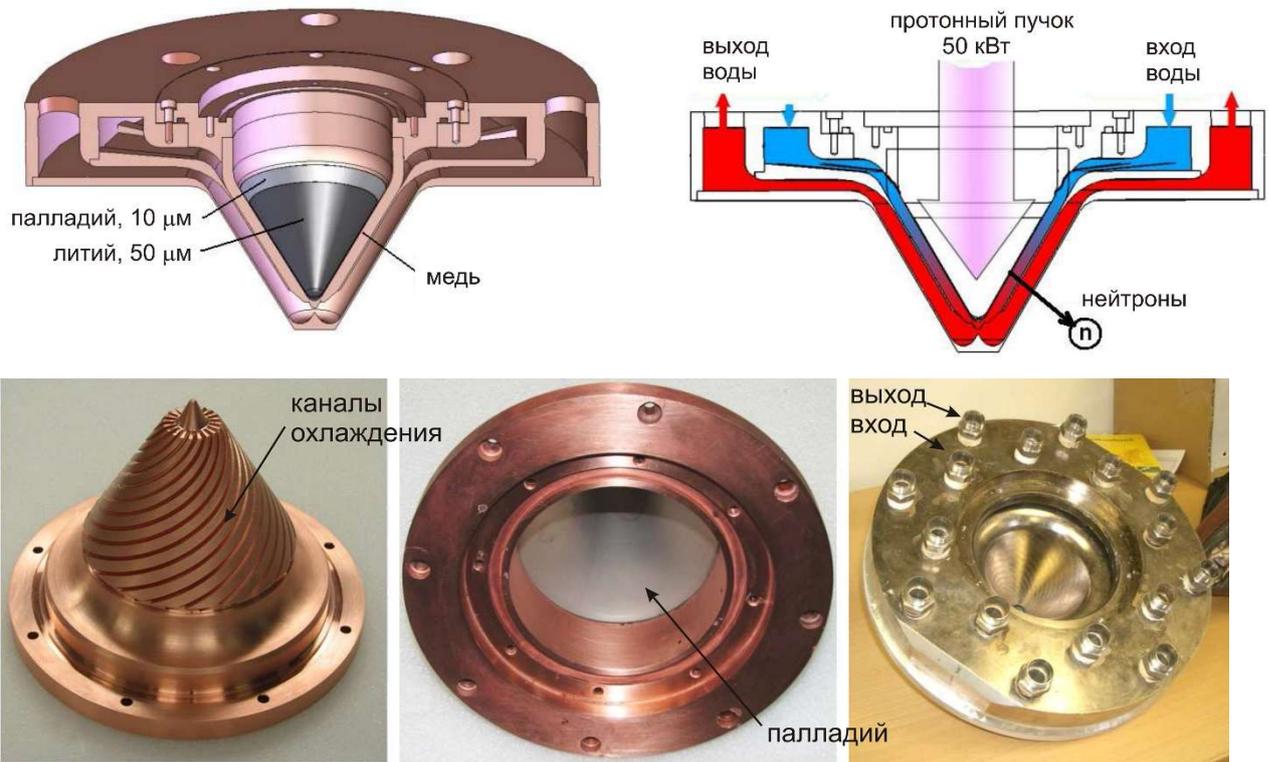


Рис. 8. Литиевая мишень в Национальном онкологическом центре Токио



Рис. 9. Облучательная комната в Национальном онкологическом центре Токио (фотография автора)

Компания Neutron Therapeutics для клиники Университета Хельсинки предложила и разработала вращающуюся литиевую мишень [80], конструкция которой базируется на их опыте изготовления устройств для ионной имплантации пластин. На Рис. 10 приведена схема мишени. По окружности на среднем радиусе 42 см размещены 16 медных пластин с микроканалами для охлаждения водой, на которые нанесен слой лития толщиной 400 мкм. При вращении со скоростью 600 оборотов в секунду пластины с литием периодически попадают под 2,8 МэВ 30 мА пучок протонов с характерным размером 12 см. Этот узел также оснащён роботизированной рукой, которая снимает активированные пластины, помещает их в контейнер для транспортировки и устанавливает новые пластины.

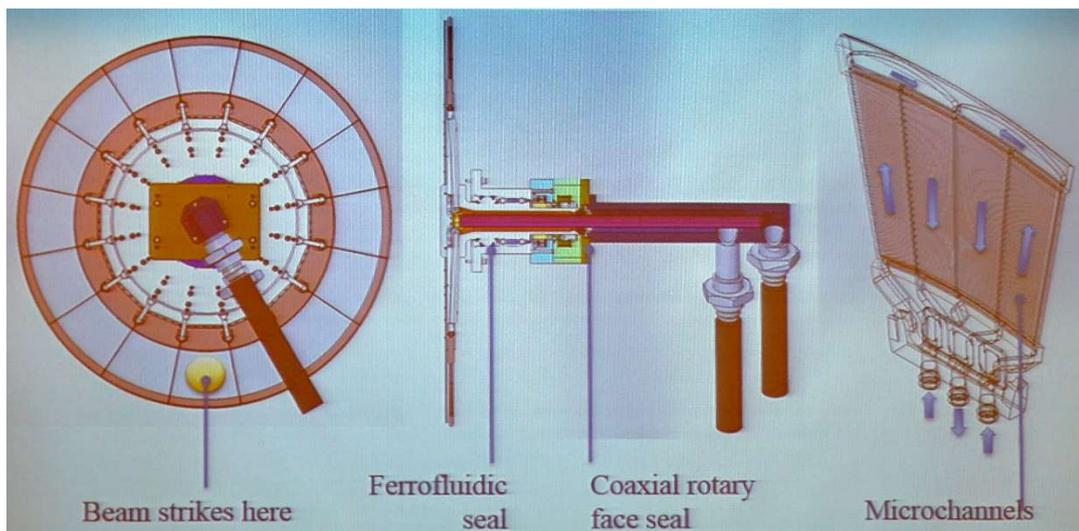


Рис. 10. Вращающаяся литиевая мишень компании Neutron Therapeutics.

В Soreq центре ядерных исследований (Явне, Израиль) по программе SARAF-1 для генерации нейтронов со средней энергией 30 кэВ для измерения Максвелл-усредненного сечения, важного для астрофизики, разработана жидколитиевая струйная мишень [81], которую они предлагают использовать и для БНЗТ. Струя лития шириной 18 мм и толщиной 1,5 мм, текущая со скоростью до 10 м/с, была протестирована пучком протонов с поперечным размером 4 мм с энергией до 1,94 МэВ и током до 1,2 мА.

Также струйную литиевую мишень шириной 50 мм, толщиной 0,6 мм, текущей со скоростью до 30 м/с разработали в Токийском технологическом институте [82]. На Рис. 11 представлены фотографии стенда струйной литиевой мишени и струи лития температурой 220 °С, текущей со скоростью 30 м/с, любезно предоставленные проф. Тоору Кобаяси во время прочтения им курса лекций в Новосибирском государственном университете осенью 2017 г.

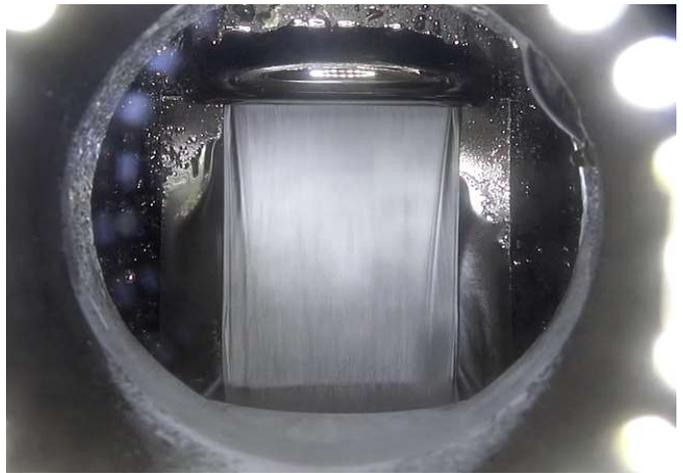


Рис. 11. Фотографии стенда струйной литиевой мишени в Токийском технологическом институте и струи лития, текущей со скоростью 30 м/с.

Поскольку для формирования терапевтического пучка нейтронов для БНЗТ наилучшей реакцией признается ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из-за максимального выхода и минимальной энергии нейтронов, то в Институте ядерной физики СО РАН разработана литиевая мишень. Моим научным руководителем были сформулированы требования к мишени, оптимальной для БНЗТ [83]. Помимо того, что нейтроногенерирующим слоем должен быть слой чистого металлического лития для максимального выхода нейтронов, этот слой должен быть в твёрдом

состоянии для предотвращения распространения нарабатываемого радиоактивного изотопа бериллий-7 и должен быть тонким для уменьшения мощности дозы нежелательного γ -излучения. Подложка, на которую напыляется литиевый нейтроногенерирующий слой, должна интенсивно охлаждаться, чтобы поддерживать литиевый слой в твёрдом состоянии при её нагреве мощным протонным пучком. Подложка должна быть стойкой к радиационным повреждениям, слабо активируемой, простой в изготовлении и легко съёмной. Весь мишенный узел должен быть тонким, чтобы максимально близко к месту генерации нейтронов разместить замедлитель и сформировать лучший по качеству терапевтический пучок нейтронов.

В результате проведенных научных исследований была отработана технология термического напыления тонкого слоя чистого лития кристаллической плотности на подложку мишени [84-85], обеспечен эффективный теплоотвод, сохраняющий литий в твердом состоянии при нагреве мощным протонным пучком [86], предложен и введен в эксплуатацию контейнер для выдержки и временного хранения активированных мишеней [87].

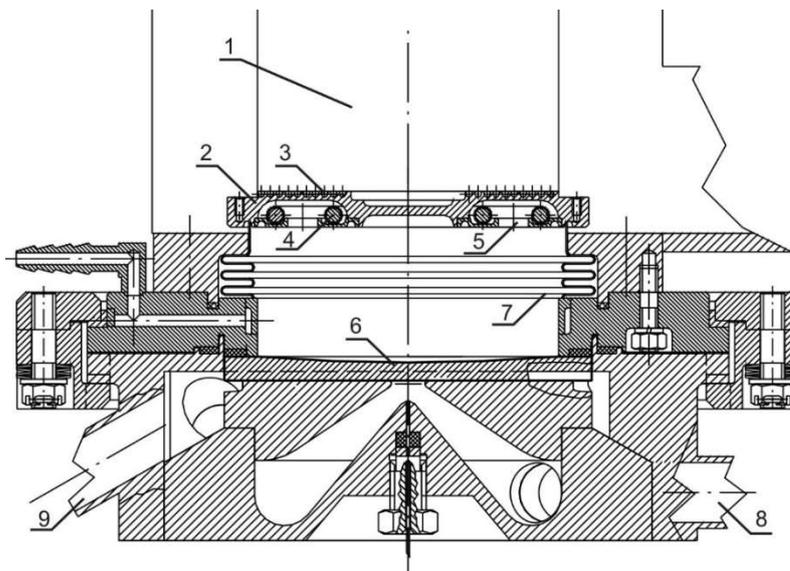


Рис. 12. Литиевая мишень с системой напыления: 1 – протонопровод, 2 – тарелка шибера, 3 – нагреватель, установленный на тарелку шибера, 4 – контейнер с литием, 5 – круговое отверстие для выхода паров лития, 6 – приёмник пучка, на который напыляется литиевый слой, 7 – сильфон, 8 и 9 – ввод и вывод воды для охлаждения.



Рис. 13. Фотографии собранной мишени без приемника пучка (слева) и медного диска со стороны, охлаждаемой водой (справа).

На ускорительном источнике эпитепловых нейтронов ИЯФ СО РАН [71] с 2008 г. по 2018 г. использовалась литиевая мишень [88], показанная на Рис. 12 и на Рис. 13. Весной 2018 г. мишеный узел был заменен на новый, отличающийся тем, что напыление лития производится не в протонопроводе, как ранее, а на отдельном стенде, и корпус всего узла, как один из результатов проведенного исследования, сделан не из нержавеющей стали, а из алюминия. Собственно подложка мишени не изменилась: всё тот же медный диск со спиралевидными каналами охлаждения.

§ 1.3. Резюме

Методика бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей предъявляет такие требования к терапевтическому пучку нейтронов, которые при современном развитии науки и техники сложны для реализации. Помимо высокой плотности потока нейтронов, что требует разработки ускорителей заряженных частиц с большим током, необходимо обеспечить их относительную монохроматичность в области, близкой к верхней границе эпитеплового диапазона энергий, что требует разработки оптимальной для БНЗТ мишени. Проблема

усугубляется отсутствием ряда научных знаний, в частности, отсутствием достоверных данных о пороге образования блистеров при имплантации 2 МэВ протонов в металлы с температурой в районе 150 °С, отсутствием данных о скорости распространения радиоактивного изотопа бериллий-7, об излучении, сопровождающем поглощение протонов в металлах, и пр. Зачастую при выборе мишени разработчики руководствуются имеющимся опытом и имеющимся ускорителем заряженных частиц, а не стремлением сформировать наилучший по качеству терапевтический пучок нейтронов. По этим причинам актуальным и необходимым представляется решение следующих задач: i) определение, во сколько раз можно понизить мощность дозы нежелательного γ -излучения, если использовать тонкую мишень, ii) определение того, какой флюенс протонов приведёт к радиационному повреждению поверхности металлов, iii) установление причин активации мишени и путей её понижения. Все эти знания позволят сделать нейтроногенерирующую мишень, оптимальную для лечения больных методикой БНЗТ. Так как реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ характеризуются близкими значениями порога генерации нейтронов: 1,882 и 2,057 МэВ соответственно, то полученные знания могут быть применимы не только к литиевой мишени, но и бериллиевой. Поскольку порог генерации нейтронов на литии и бериллии отличается незначительно (менее 9 %), то для общности результата в проведённых исследованиях энергия протонного пучка была выбрана 2 МэВ, немного больше, чем порог генерации нейтронов на литии, и немного меньше, чем порог генерации на бериллии.

Глава 2

Гамма-излучение при взаимодействии протонов с литием и с конструкционными материалами

В Главе 2 приведена оценка мощности дозы сопутствующего γ -излучения при поглощении протонов в толстой литиевой мишени; показана необходимость применения тонкой литиевой мишени; представлены результаты измерения мощности дозы γ -излучения, нейтронного излучения и наведенной активности при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в различных конструкционных материалах; представлены результаты измерения сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и выхода 478 кэВ γ -квантов из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,65 до 2,225 МэВ; и представлены значения во сколько раз применение тонкой литиевой мишени вместо толстой уменьшает выход нежелательного при БНЗТ γ -излучения без уменьшения выхода нейтронов в зависимости от энергии протонов и материала подложки мишени.

§ 2.1. Процессы, приводящие к излучению при поглощении протонов в металлах

Известно, что взаимодействие протонов с ядрами вещества в результате реакций (p,γ) , $(p,p'\gamma)$, $(p,n\gamma)$ и $(p,\alpha\gamma)$ приводит к генерации γ -квантов. Наибольшую интенсивность, как было отмечено в работе [89], имеют γ -лучи с энергией 0,478 МэВ от реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$. Помимо генерации этих γ -квантов взаимодействие протонов с литием ведёт к генерации γ -квантов с энергиями 16-19 МэВ при радиационном распаде ядра ${}^8\text{Be}$ реакции ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ и α -частиц в результате термоядерных реакций ${}^7\text{Li}(p,\alpha)\alpha$ и ${}^6\text{Li}(p,\alpha){}^3\text{He}$ с энергетическим выходом 17,347 и 4,021 МэВ. Авторами работы [89] сделана оценка поглощённой дозы при токе пучка 10 мА и использовании толстой (0,3 мм) литиевой мишени. Получено, что источник с такой активностью создаёт на расстоянии 20 см, характерном для источника эпитепловых нейтронов, поток γ -квантов $6 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ и, соответственно, поглощённую дозу в 100 мин экспозиции, равную 10 Гр. Такая величина нелокализованной дозы очень значительна, поскольку для терапии требуется доставить нейтронами в опухоль дозу на уровне 60 Гр экв.

По современным представлениям поглощенная доза от сопутствующего γ -излучения при проведении БНЗТ не должна превышать 10 % от поглощенной дозы, создаваемой нейтронами. По этой причине необходимо уменьшить дозу от γ -лучей с энергией 0,478 МэВ от реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$.

Применительно к проблеме БНЗТ отметим, что взаимодействие протонов с тяжелыми ядрами приводит к заметно меньшему потоку γ -квантов, чем при взаимодействии протонов с ядрами лития. Результаты экспериментального измерения выхода γ -квантов при поглощении протонов с энергиями 1,77 и 4 МэВ в легких ядрах представлены в работе [90]. В этой работе показано, что если при

взаимодействии протонов с ядрами лития, бора, фтора и натрия выходы γ -квантов сравнимы, то при взаимодействии протонов с ядрами магния, алюминия, кремния и фосфора выход γ -квантов существенно ниже. При этом во всех случаях энергия генерируемых γ -квантов существенно выше, чем в литии.

Поскольку порог реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ существенно ниже порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, то поток нежелательного γ -излучения можно уменьшить используя тонкий слой лития, такой, что при прохождении которого энергия протонов становится ниже порога ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и дальнейшее поглощение протонов происходит в материале, из которого выход γ -квантов существенно ниже, чем из лития.

По этой причине актуальным представляется измерение мощности дозы γ -излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в различных конструкционных материалах и измерение выхода γ -квантов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$.

§ 2.2. Измерение мощности дозы γ -излучения при поглощении 2 МэВ протонов в конструкционных материалах

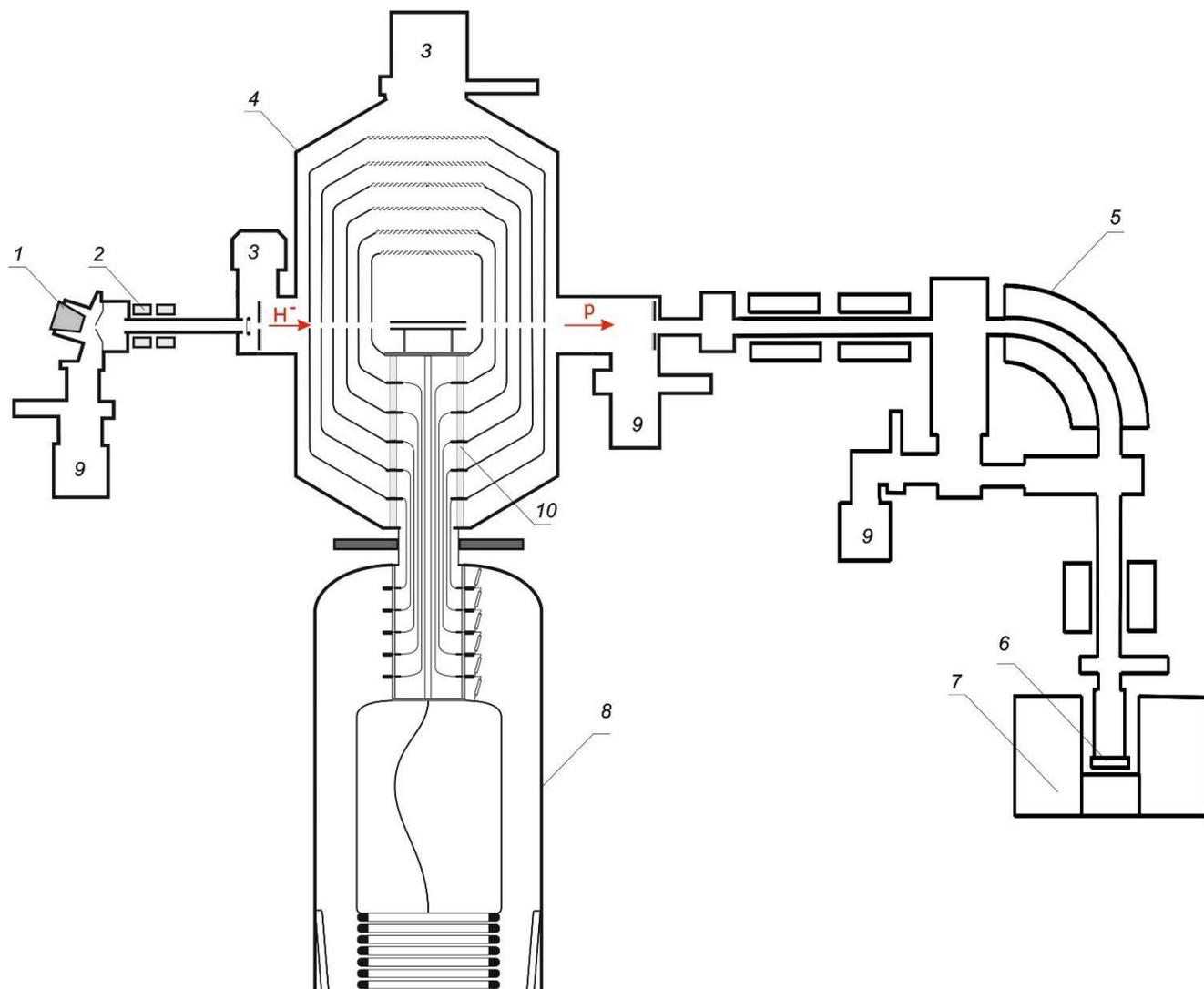


Рис. 14. Схема ускорительного источника эпитепловых нейтронов: 1 – источник отрицательных ионов водорода, 2 – магнитная фокусирующая линза, 3 – криогенный насос, 4 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 5 – поворотный магнит, 6 – нейтроногенерирующая мишень, 7 – система формирования пучка нейтронов, 8 – секционированный выпрямитель, 9 – турбомолекулярный насос, 10 – проходной изолятор.

Экспериментальные исследования проведены на ускорительном источнике эпитепловых нейтронов, предложенном [69] и созданном [70, 71] в ИЯФ СО РАН для развития методики бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей. На Рис. 14 представлена схема источника нейтронов. Сначала до половинной энергии ускоряют отрицательные ионы водорода, генерируемые поверхностно-плазменным источником [91, 92], а затем после обдирки в газовой обдирочной мишени, установленной внутри высоковольтного электрода, ускоряют протоны до полной энергии. Генерацию нейтронов осуществляют в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ при сбросе протонного пучка на литиевую мишень [88]. При проведении данных исследований параметры пучка протонов были следующие: энергия – 2 МэВ, ток – до 700 мкА.

Для проведения исследований нейтроногенерирующая мишень [88] была заменена на специально изготовленный вакуумный объем (Рис. 15), состоящий из трубы из нержавеющей стали с внутренним диаметром 100 мм, толщиной стенки 2 мм, днища из медного диска толщиной 16 мм, охлаждаемого водой, и патрубка с кварцевым стеклом для наблюдения за образцом.

На дно вакуумного объема помещали различные конструкционные материалы (графит, алюминий, титан, ванадий, нержавеющая сталь, медь, молибден, тантал), преимущественно в виде тонких дисков диаметром 95 мм и с помощью магнитной развертки равномерно облучали протонным пучком с энергией 2 МэВ и током до 500 мкА. Веб-камерой осуществляли наблюдение за состоянием поверхности образца и, в ряде случаев, по свечению образца – за равномерностью развертки пучка.

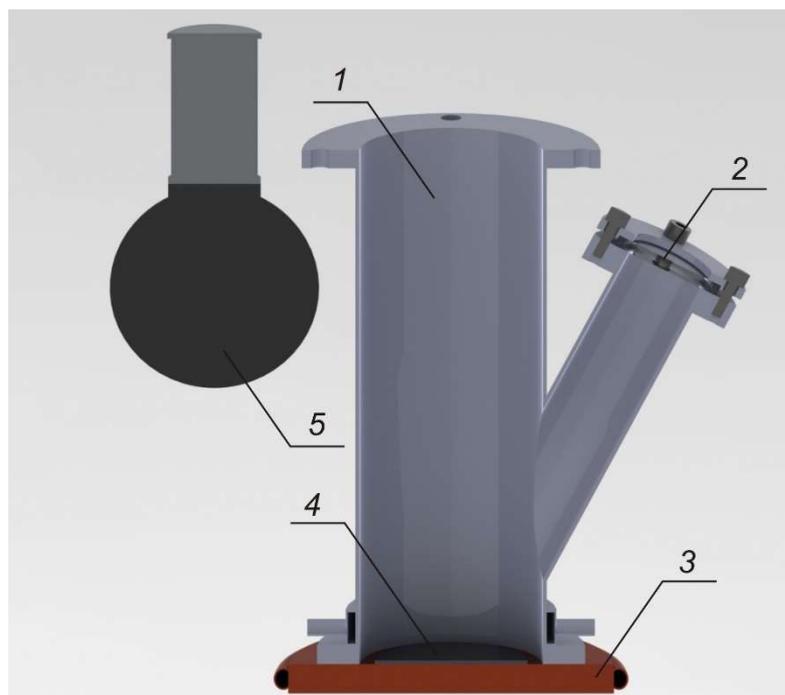


Рис. 15. Схема эксперимента: 1 – вакуумный объем, 2 – окно для наблюдения, 3 – охлаждаемое днище вакуумного объема, 4 – образец, 5 – сферическая ионизационная камера.

Мощность поглощенной дозы электромагнитного излучения измеряли сферической ионизационной камерой разработки ИЯФ СО РАН, подобной описанной в работе [93] и размещенной на расстоянии 25 см от центра образца (Рис. 16). Поскольку в показания ионизационной камеры вносило вклад излучение от ускорителя, то для определения этого вклада использовали показания другой ионизационной камеры, расположенной на удалении от облучаемых образцов и регистрирующей тормозное излучение только от ускорителя [94]. Расстояния до детекторов выбирались исходя из скорости счета, при этом детектор должен быть достаточно близко, чтобы сигнал был в основном от мишени, но также его нельзя располагать в упор, чтобы в задачу не входила неопределенность с положением пучка на мишени диаметром 95 мм. Спектр γ -излучения измеряли ВГО γ -спектрометром со сцинтиллятором диаметром 80 мм, высотой 100 мм (Рис. 17).

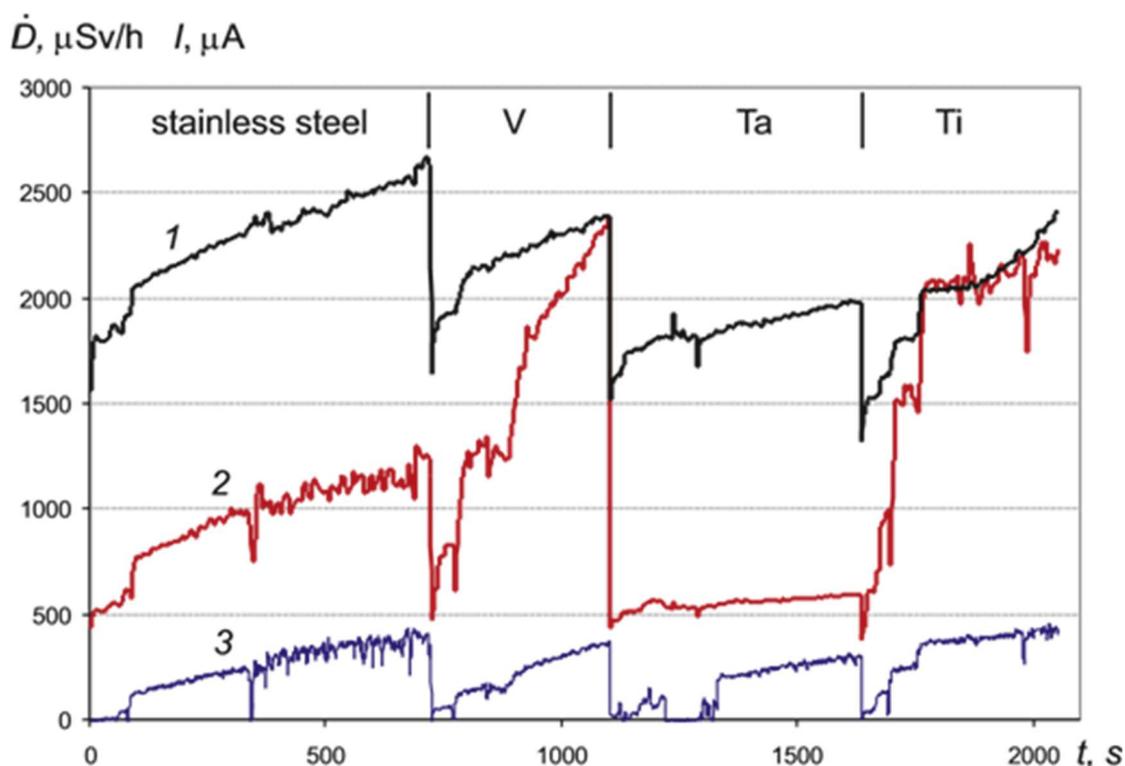


Рис. 16. Временные зависимости мощности дозы рентгеновского и γ -излучения, измеренной ионизационными камерами на расстоянии 7,5 м от ускорителя и 6,4 м от образца (1) и на расстоянии 25 см от образца (2) при облучении протонным пучком нержавеющей стали, ванадия, тантала и титана (график 1 приподнят на 1500 мкЗв/ч, график 2 – на 500 мкЗв/ч). Также показана зависимость тока протонного пучка от времени (3).

Мощность дозы нейтронного излучения измеряли дозиметром-радиометром ДКС-96 с блоком детектирования БДМН-96 на расстоянии 50 см от образца. Также осуществляли регистрацию нейтронов разработанным детектором нейтронов с литийсодержащим сцинтиллятором GS20 диаметром 18 мм, толщиной 4 мм (The Saint-Gobain Crystals, США), смонтированным на фотоэлектронном умножителе Hamamatsu R6095 (Рис. 18).

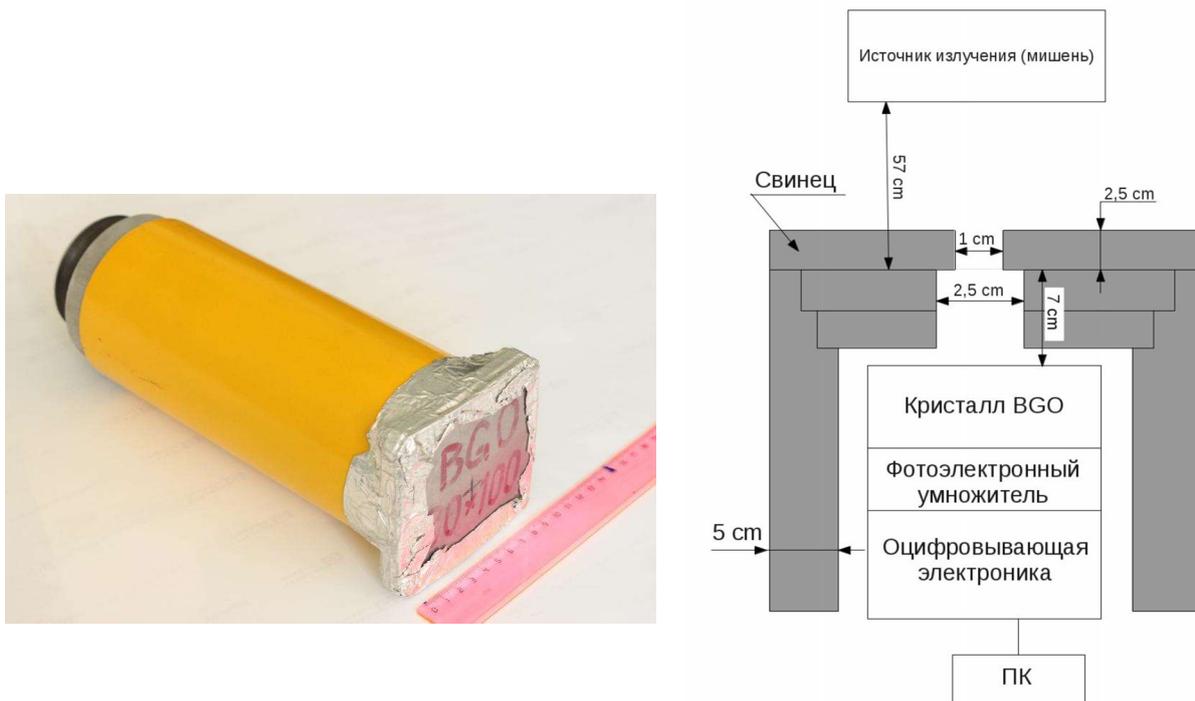


Рис. 17. Фотография BGO γ -спектрометра и схема проведения измерений.



Рис. 18. Фотография детектора нейтронов и источника питания отдельно.

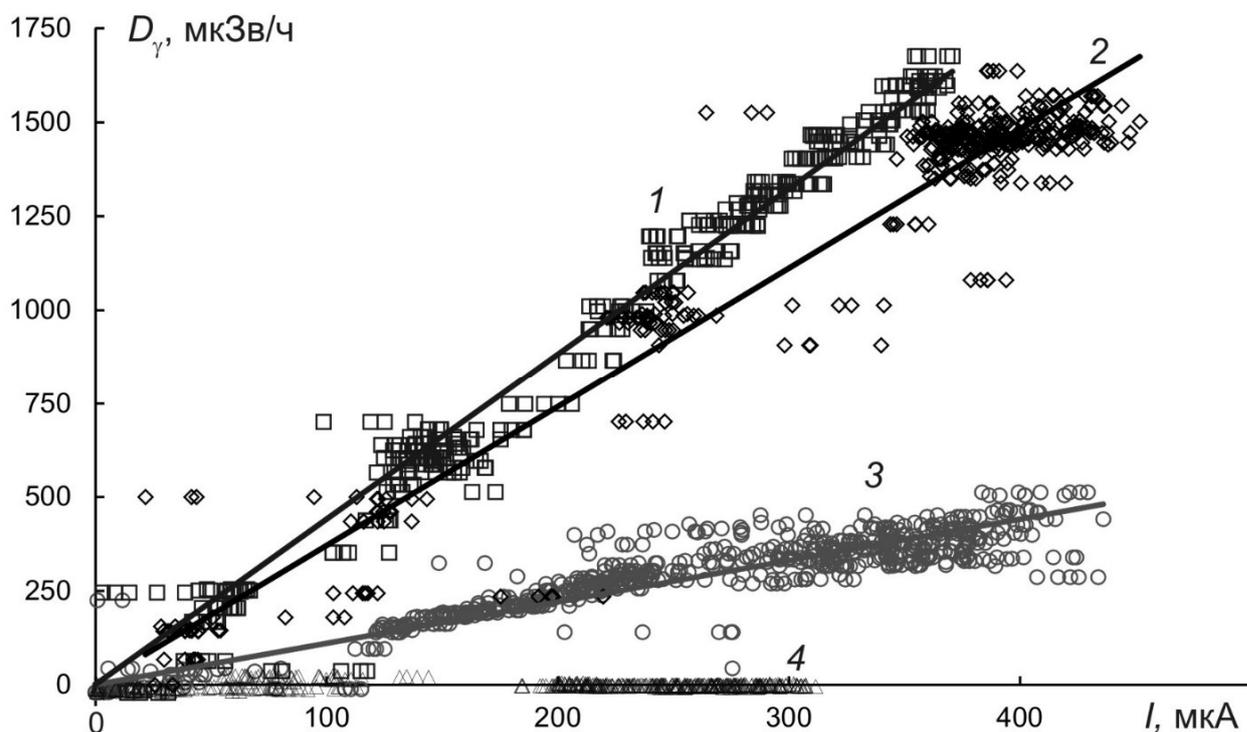


Рис. 19. Зависимость мощности дозы рентгеновского и γ -излучения от тока протонного пучка при облучении пучком ванадия (1, \square), титана (2, \diamond), нержавеющей стали (3, \circ) и тантала (4, \triangle).

На Рис. 19 приведены графики зависимости мощности дозы рентгеновского и γ -излучения (с вычетом вклада излучения от ускорителя) от тока протонного пучка для разных образцов. Видно, что мощность дозы линейно растет с ростом тока. Проводя линейную аппроксимацию данных методом наименьших квадратов (смотри прямые на Рис. 19), определяем для всех материалов величины мощности дозы излучения на единицу тока, они приведены в Табл. 1. Также в таблице представлены значения погрешности определения мощности дозы, характеризующие разброс экспериментальных данных. Заметим, что данные для лития получены с использованием нейтроногенерирующей мишени. Мощность дозы сначала была измерена без напыленного литиевого слоя – в этом случае протоны поглощались в медной подложке мишени, а затем с напыленным слоем чистого металлического лития толщиной 50 мкм (Рис. 20). Энергия протонов уменьшается с 2 до 1,625 МэВ при прохождении лития такой толщины.

Табл. 1. Мощность дозы γ -излучения при облучении 2 МэВ протонами.

Материал (массовое число)	Мощность дозы мкЗв/ч для 1 мА на расстоянии 1 м	Погрешность, %
Слой лития толщиной 50 мкм на медной подложке	750	5
Графит	25	10
Алюминий (27)	150	5
Титан (48)	230	8
Ванадий (51)	270	4
Нержавеющая сталь 12Х18Н10Т	70	10
Медь (64)	90	5
Молибден (96)	< 6	
Тантал (181)	< 6	

Из Табл. 1 видно, что мощность дозы при поглощении протонов в медной подложке с напыленным литием в 8,3 раза больше мощности дозы при поглощении в меди без литиевой подложки. Приведенные в таблице данные для слоя лития толщиной 50 мкм на медной подложке получены путем умножения мощности дозы в меди на этот коэффициент 8,3. Из таблицы видно, что поглощение протонов с энергией 2 МэВ в конструкционных материалах, особенно в молибдене или тантале, сопровождается заметно меньшим уровнем мощности дозы излучения, чем в литии. На Рис. 21 приведены спектры γ -излучения при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в конструкционных материалах, измеренные ВГО γ -спектрометром. Напомним, что поглощение протонов в литии приводит к генерации монохроматического потока γ -квантов с энергией 478 кэВ –

экспериментальные результаты приведены в работе [95]. На Рис. 21 видно, что практически полностью отсутствует излучение от молибдена и тантала.

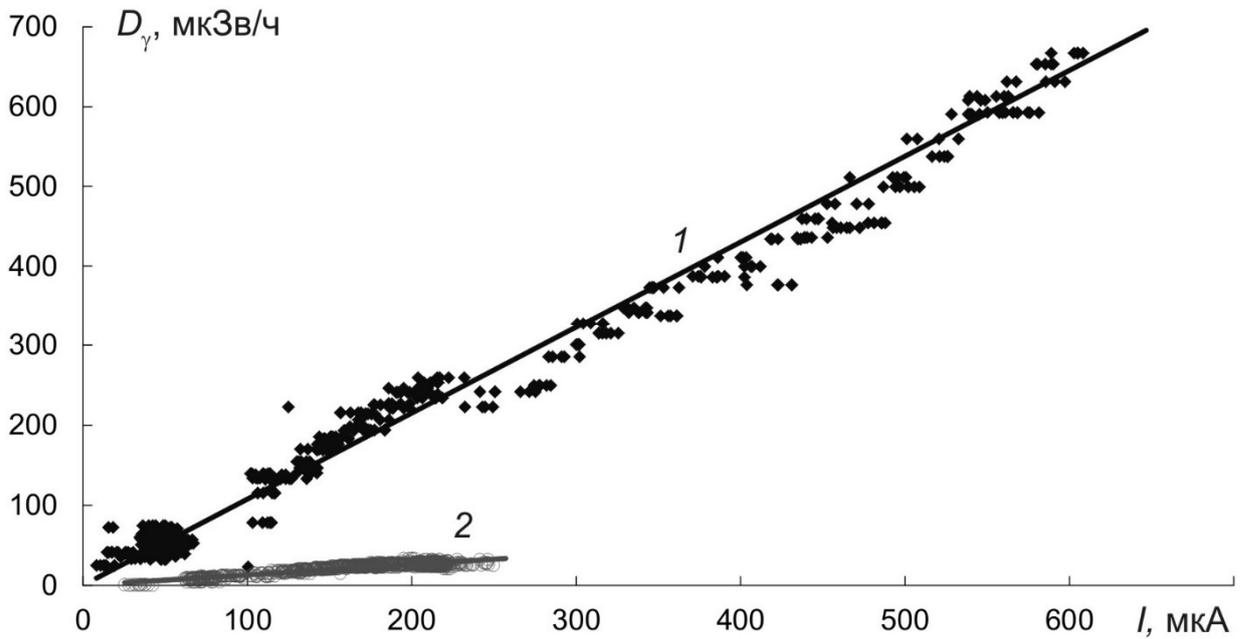


Рис. 20. Зависимость мощности дозы излучения от тока протонного пучка при облучении нейтроногенерирующей мишени с напыленным на медную подложку мишени литием (1) и на подложку из чистой меди без напыления лития (2).

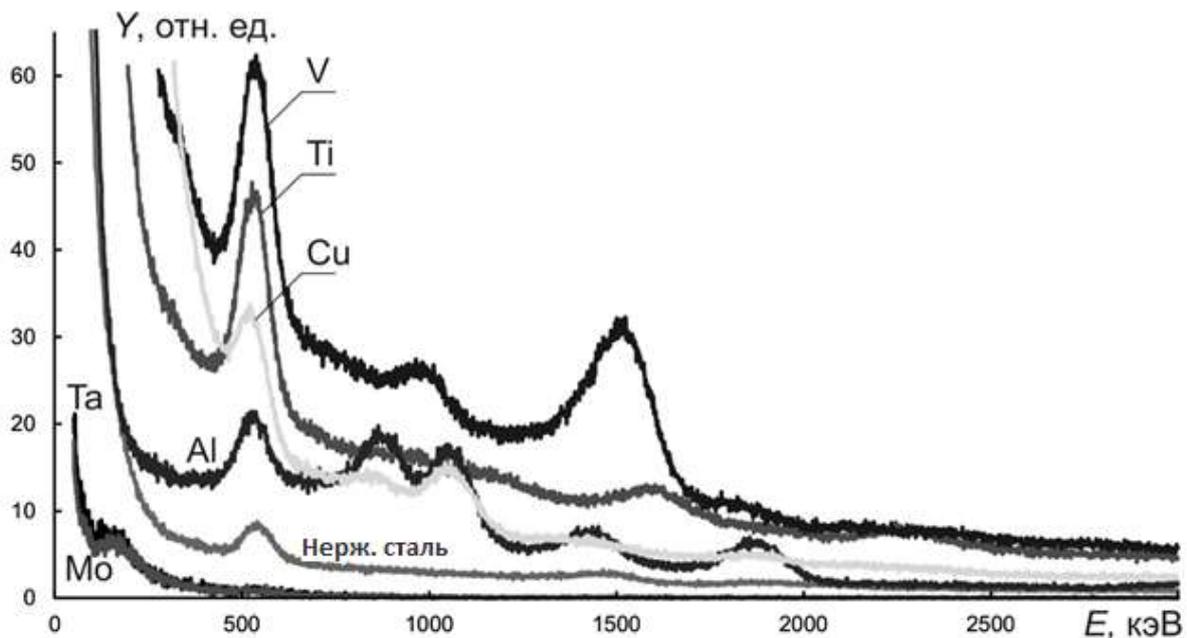


Рис. 21. Спектр γ -излучения при облучении различных конструкционных материалов протонным пучком с энергией 2 МэВ.

На Рис. 22 приведены спектры остаточной активности графита и титана, на других материалах заметной активности не обнаружено. Определено, что активация графита обусловлена процессом $^{12}\text{C}(p)^{13}\text{N}$ с последующим β^+ -распадом в ядро ^{13}C , активация титана – поглощением протонов изотопами ^{46}Ti и ^{47}Ti с последующим β^+ -распадом ядер ^{47}V , ^{48}V и электронным захватом ^{48}V [96]. Активация титана протонным пучком может быть также использована в диагностических целях для измерения перенесенного пучком заряда. Это свойство было использовано при измерении размера пучка протонов во время проведения научных исследований радиационного блистеринга, описанного в следующей главе диссертации.

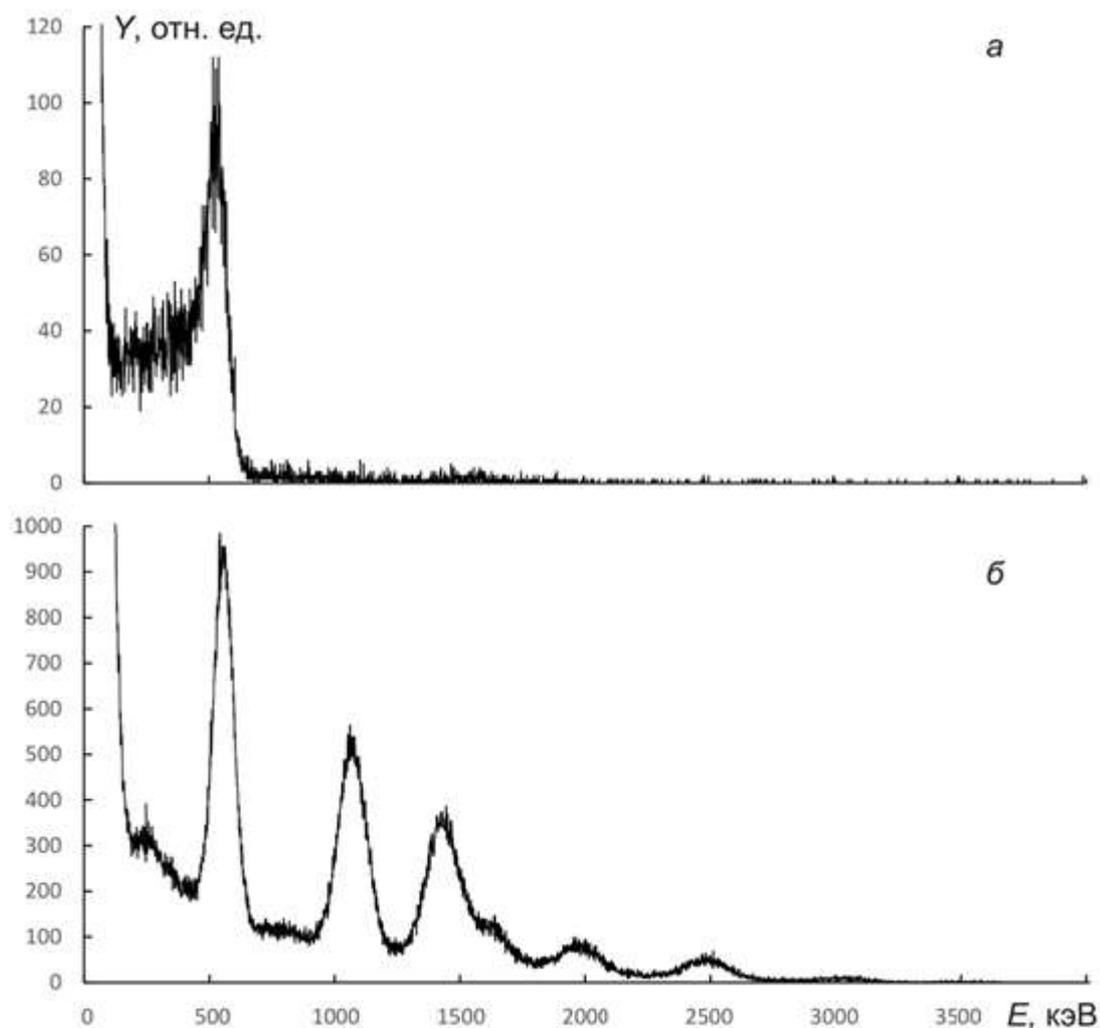


Рис. 22. Спектр γ -излучения остаточной активности графита (а) и титана (б).

Обнаружено, что облучение 2 МэВ протонным пучком нержавеющей стали, титана и ванадия приводит к выходу нейтронов, облучение других материалов выходом нейтронов не сопровождается. Поглощенная мощность дозы измерена дозиметром-радиометром ДКС-96. Для ванадия она составила величину 7000 мкЗв/(ч м² мА), для нержавеющей стали – в 25 раз меньше. Генерация нейтронов подтверждается присутствием характерного сигнала детектора с литийсодержащим сцинтиллятором GS20, обусловленного реакцией ${}^6\text{Li} + n \rightarrow {}^3\text{H} + \alpha + 4,785 \text{ МэВ}$ (каналы № 300-400 на Рис. 23).

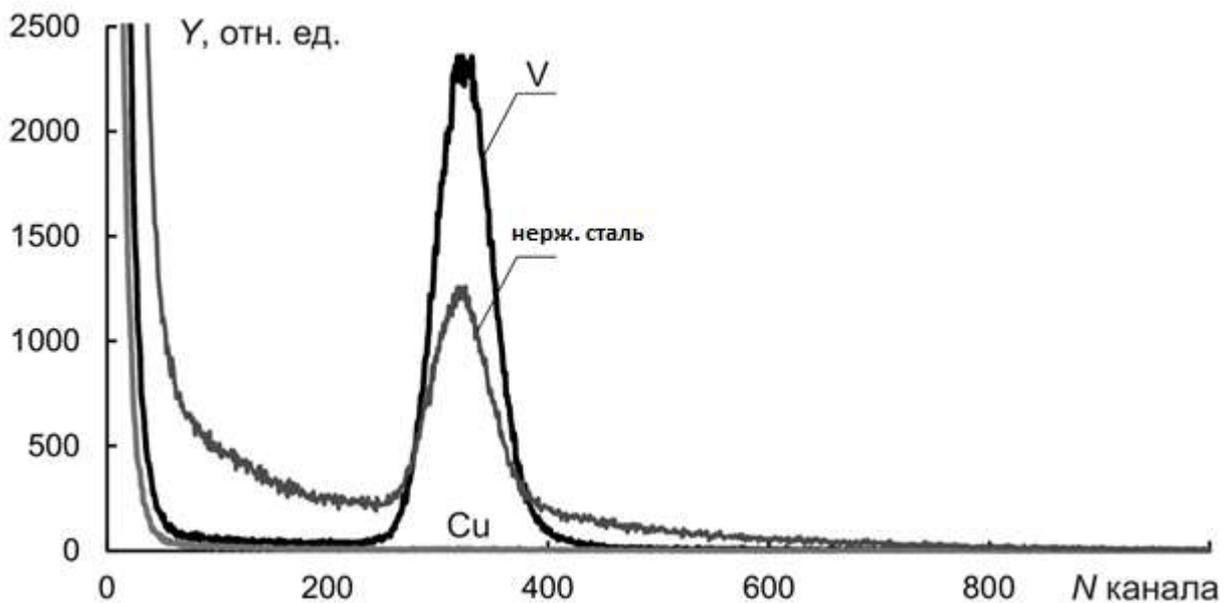


Рис. 23. Зависимость скорости счета нейтронного детектора от номера канала (энергии) при облучении протонами с энергией 2 МэВ меди (Cu), нержавеющей стали (нерж. сталь) и ванадия (V).

На Рис. 24 представлена зависимость скорости счета детектора в области этого нейтронного пика от энергии протонов. Полученные зависимости позволили определить, что генерация нейтронов в нержавеющей стали обусловлена реакцией ${}^{55}\text{Mn}(p,n){}^{55}\text{Fe}$ (порог реакции 1,034 МэВ) из-за присутствия марганца в виде примеси, в титане – ${}^{49}\text{Ti}(p,n){}^{49}\text{V}$ (порог реакции 1,43 МэВ) и в ванадии – ${}^{51}\text{V}(p,n){}^{51}\text{Cr}$ (порог реакции 1,562 МэВ). Поскольку порог данных реакций существенно ниже порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, энергия генерируемых нейтронов выше энергии

нейтронов, испускаемых литием. По этой причине применение данных конструкционных материалов – нержавеющей стали, титана и ванадия – в качестве подложки нейтроногенерирующей мишени нежелательно. Система формирования пучка эпитепловых нейтронов [97, 98] оптимизирована на замедление нейтронов из реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и не обеспечит должного замедления быстрых нейтронов. Как следствие, при проведении терапии появится дополнительная нежелательная доза от быстрых нейтронов.

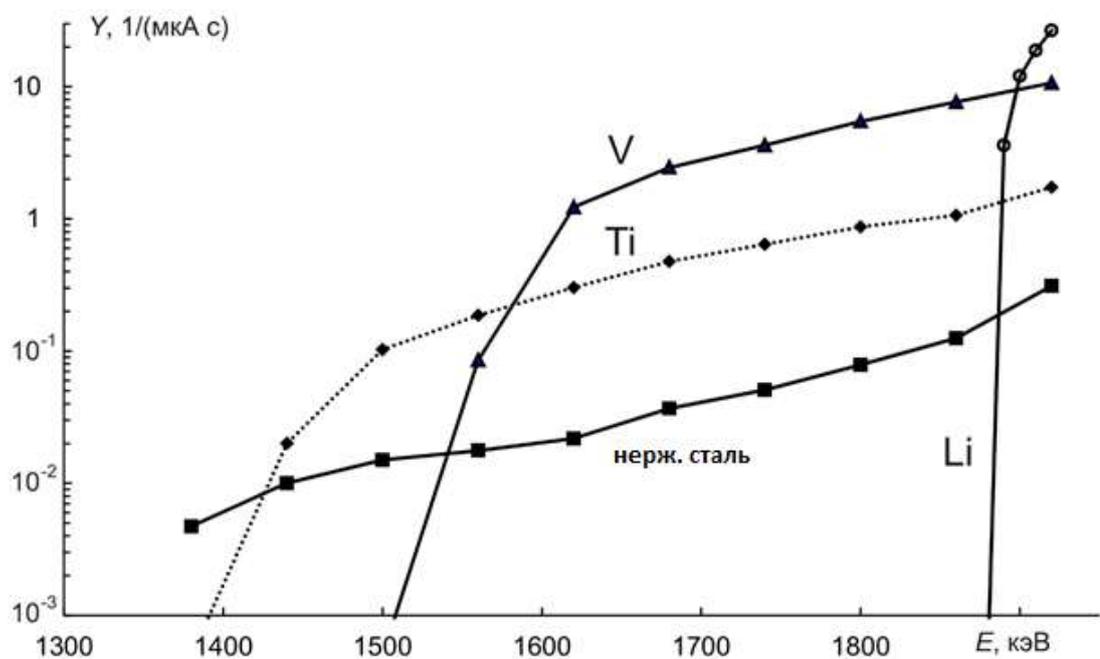


Рис. 24. Зависимость скорости счета детектора в области нейтронного пика от энергии протонов при их поглощении в ванадии (V), титане (Ti), нержавеющей стали (нерж. сталь) и фториде лития (Li).

Т.о., в результате проведенного исследования установлено, что поглощение 2 МэВ протонов в таких конструкционных материалах, как графит, алюминий, титан, ванадий, нержавеющая сталь, медь, молибден и тантал, приводит к меньшему уровню дозы γ -излучения, чем поглощение 2 МэВ протонов в литии. Поглощение протонов в титане, ванадии и нержавеющей стали приводит к нежелательному испусканию быстрых нейтронов, а в графите и титане – к нежелательной активации. Следовательно, применение в качестве подложки

тонкой литиевой мишени алюминия, меди, молибдена и тантала позволяет уменьшить мощность дозы нежелательного γ -излучения без уменьшения потока нейтронов.

§ 2.2. Измерение сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и выхода γ -квантов из толстой литиевой мишени

На Рис. 25 приведены имеющиеся литературные данные о выходе γ -квантов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ из толстой литиевой мишени [89, 90, 99-101], на Рис. 26 – о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ [89, 102-106]. Видно, что данные разных авторов существенно отличаются друг от друга и какие из них достоверные понять невозможно.

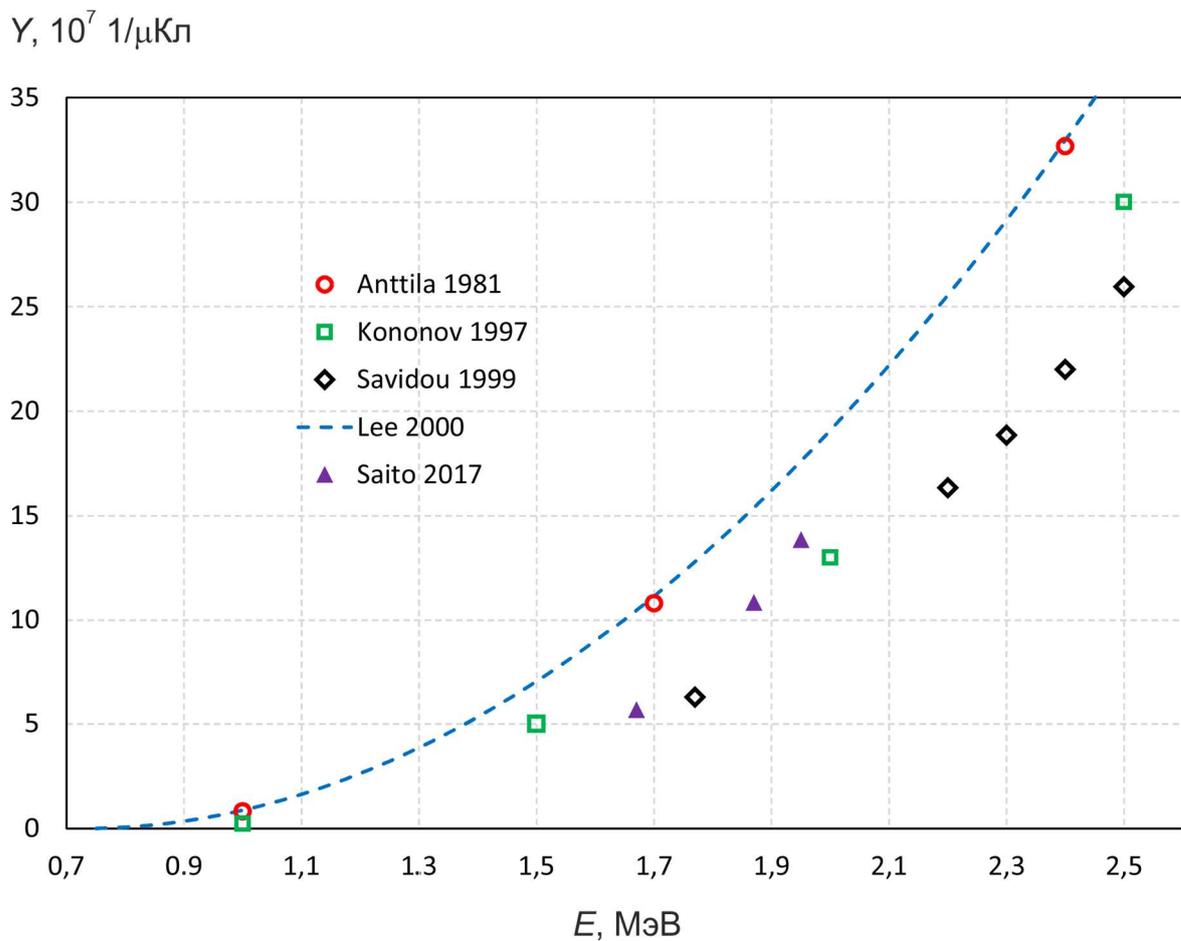


Рис. 25. Выход γ -квантов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$: \circ – измеренный [99], \square – расчетный [89], \diamond – измеренный при $E = 1,75$ МэВ и расчетный при других значениях энергии [90], Δ - измеренный при $E = 1,67$ МэВ и $1,87$ МэВ и оцененный при $1,95$ МэВ [101], пунктирная линия – расчетный [100].

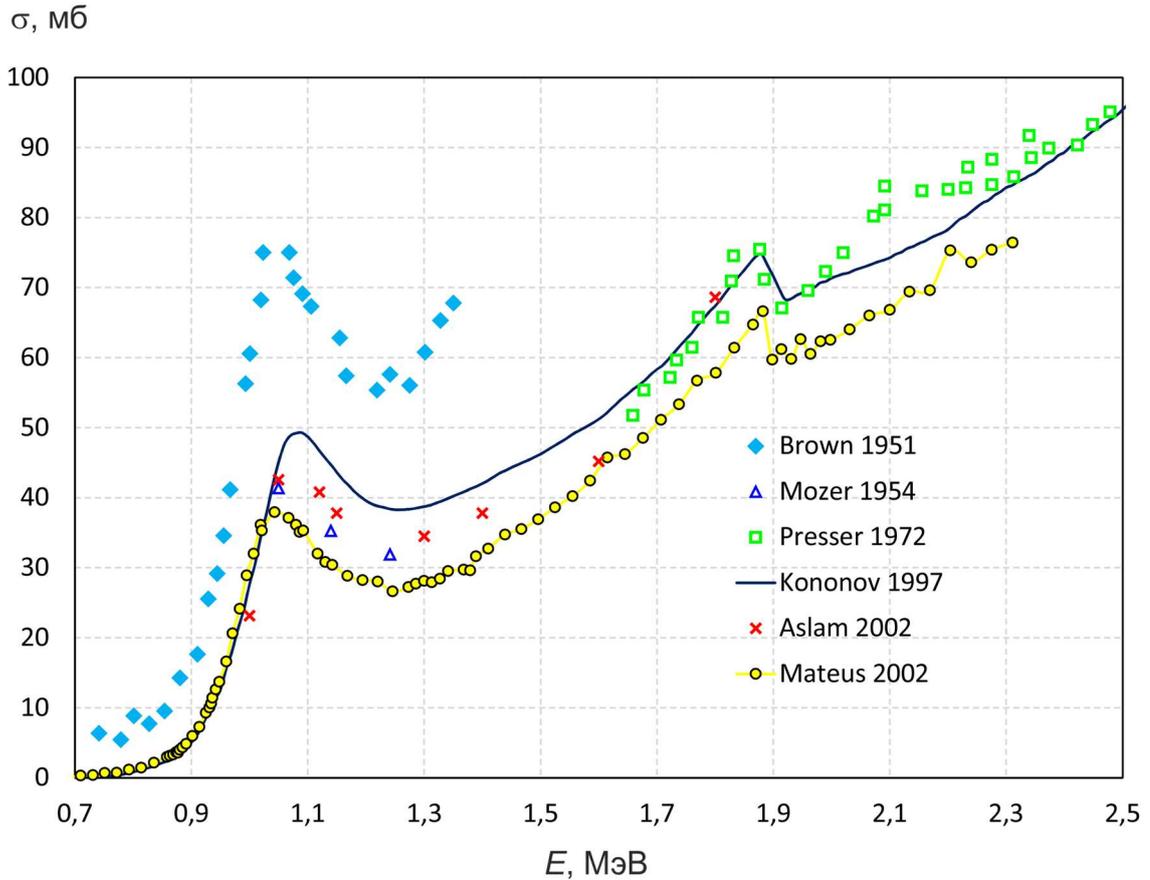


Рис. 26. Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ [89, 102-106].

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 γ -квантов из толстой литиевой мишени.

Исследование проведено на ускорителе-тандале 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. 27.

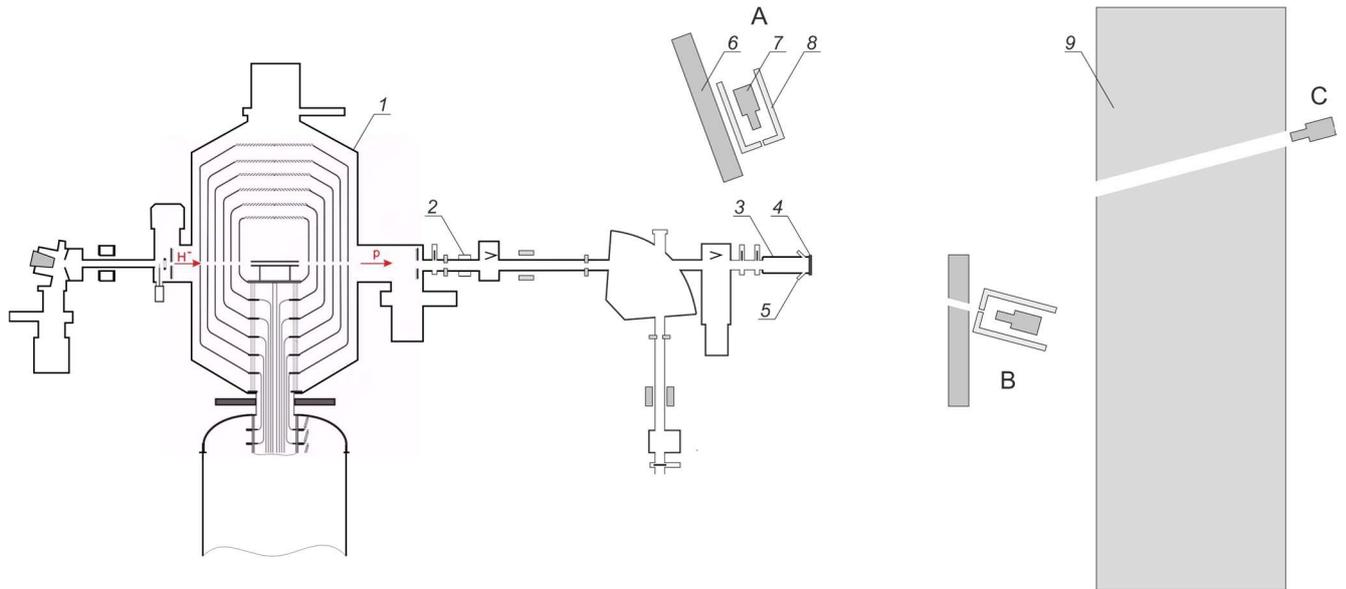


Рис. 27. Схема экспериментальной установки: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – бесконтактный датчик тока, 3 – мишенный узел, 4 – литиевая мишень, 5 – окна для наблюдения, 6 – временная бетонная стенка, 7 – спектрометр γ -излучения, 8 – свинцовый коллиматор, 9 – бетонная стена.

Литиевую мишень 4 помещают в торце вакуумной камеры горизонтальной части тракта транспортировки пучка протонов. Мишень представляет собой медный диск диаметром 144 мм толщиной 8 мм. Со стороны протонного пучка на медный диск термическим способом напылен тонкий слой лития кристаллической плотности диаметром 82 мм. С обратной стороны медного диска внутри диаметра 122 мм сделаны четыре двузаходных спиралевидных канала для охлаждения водой [88]. К обратной стороне медного диска прижимают плоский алюминиевый диск с отверстиями для подачи и отвода охлаждающей воды. 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 [86]. Напыление лития на образец проводят на отдельном стенде по сценарию, аналогичному описанному в работе [84]. После напыления лития образец вместе с частью вакуумной камеры, закрытой шиббером для поддержания вакуума внутри, отсоединяют от стенда напыления лития, переносят на экспериментальную установку и подсоединяют к горизонтальному тракту транспортировки пучка протонов.

При напылении лития используют природный литий марки ЛЭ-1 производства Новосибирского завода химконцентратов; в используемой партии процентное содержание лития было 99,956 %. Процентное содержание лития-7 в природном литии варьируется от 92,41 % [107] до 92,58 % [108]; мы будем полагать содержание лития-7 равное среднему значению, а именно 92,5 %.

Ток пучка протонов измеряют и контролируют бесконтактным датчиком тока NPCT (Bergoz Instrumentation, Франция) (2 на рис. 27); положение пучка – термopарами, вставленными внутрь охлаждаемых диафрагм. Положение и размер пучка протонов на поверхности литиевой мишени 4 измеряют и контролируют видеокамерой Hikvision, установленной на окно 5, и восемью термopарами, вставленными в отверстия медного диска мишени, просверленные с его боковой поверхности.

Мощность амбиентного эквивалента дозы γ -излучения контролируют дозиметром γ -излучения ДБГ-С11Д (ООО "Доза", Россия) [109]. Дозиметр ДБГ-С11Д состоит из счетчика Гейгера–Мюллера, нечувствительного к нейтронам. Погрешность измерения мощности дозы составляет 15 %. Эффективный центр канала измерения дозиметра расположен на расстоянии 31,6 см от места излучения под углом 90° к направлению пучка протонов.

Интенсивность γ -излучения измеряют γ -спектрометром. При энергии ниже порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, равного 1,882 МэВ, используют спектрометр γ -излучения СЕГ-1КП-ИФТП 12 на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия (Институт физико-технических проблем, Дубна). При энергии выше 1,882 МэВ используют γ -спектрометр с NaI(Tl) сцинтиллятором размером 51 мм \times 51 мм (Азимут Фотоникс, Москва; поставщик сцинтиллятора Saint-Gobain Crystals).

Измерения проведены в 3 вариантах размещения γ -спектрометра; на рис. 27 они показаны как А, В и С. В положениях А и В 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 С спектрометр размещен в соседнем бункере за бетонной стеной толщиной 1,47 м. В стене было специально проделано отверстие, направленное на мишень. Заметим, что размещение бетонной стенки, коллиматора и спектрометра показано на рис. 27 схематически; в реальности они расположены в горизонтальной плоскости.

Ниже будут последовательно представлены результаты измерений, выполненных в положениях А, В и С. Эта последовательность представления результатов является хронологической. Сначала в положении А были проведены измерения при энергии протонов ниже порога генерации нейтронов, затем в положении В была определена изотропность излучения, затем в положении С улучшена точность измерения и расширен диапазон энергии протонов.

Положение А.

Чувствительная часть HPGe спектрометра размещена на расстоянии 2,00 м под углом 110° . Типичный сигнал спектрометра показан на рис. 28. 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 90 кэВ, испускаемое свинцом. Мертвое время спектрометра не превышало 26% при измерении сечения реакции и 13,4% при измерении выхода фотонов.

Спектрометр γ -излучения калиброван по полной чувствительности радионуклидным источником фотонного излучения закрытого типа Cs-137 активностью $1,6 \cdot 10^8$ 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 7 %.

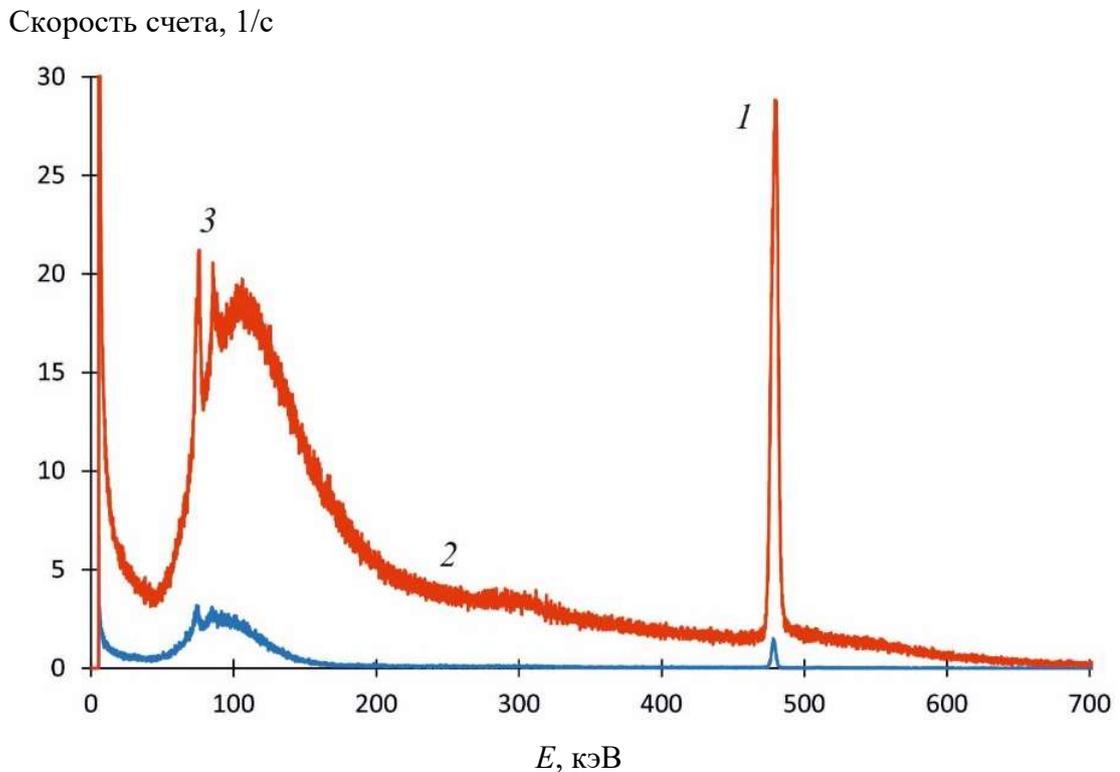


Рис. 28. Типичный сигнал HPGe γ -спектрометра: 1 – 478 кэВ фотоны, испускаемые в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$, 2 – тормозное излучение ускорителя, 3 – характеристическое рентгеновское излучение, испускаемое свинцом. Верхняя кривая получена при энергии протонов 1,75 МэВ, нижняя – 0,8 МэВ.

На рис. 29 представлен результат измерения выхода γ -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 [110].

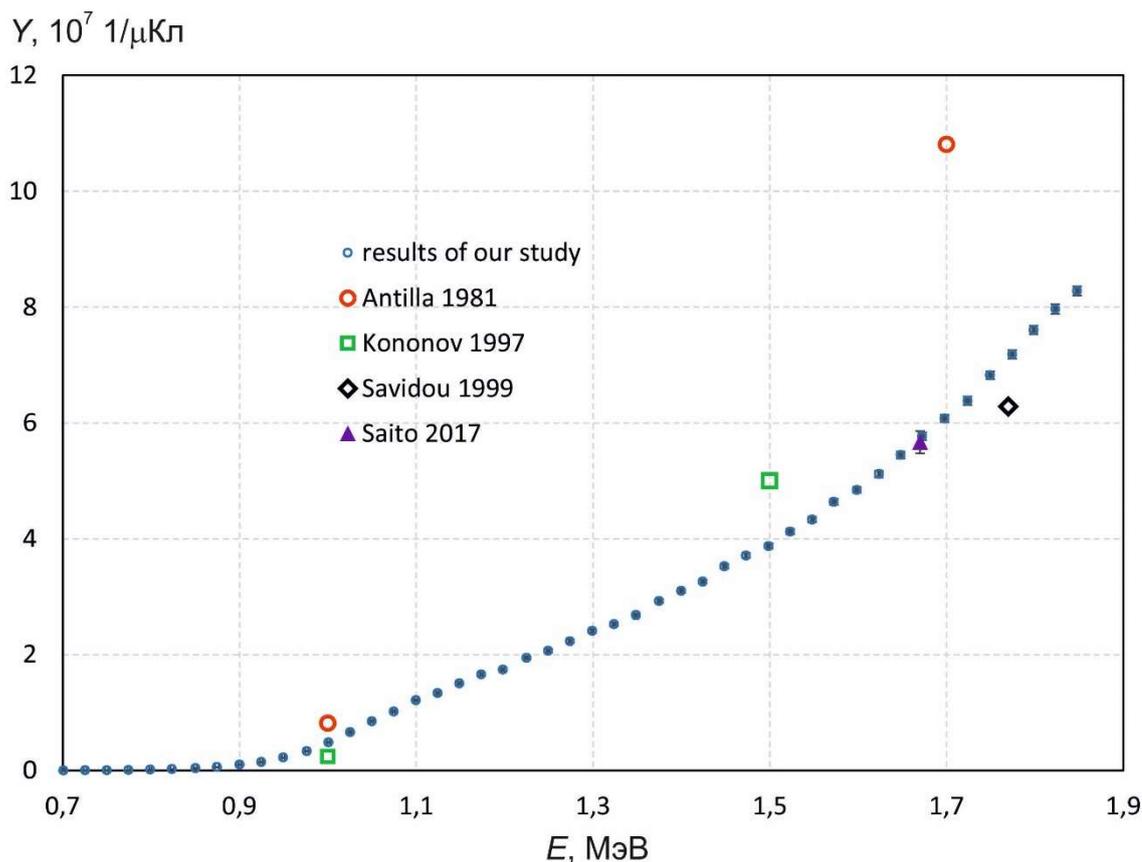


Рис. 29. Измеренный выход γ -квантов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$. Для сравнения приведены данные измерений: \circ – [99], \diamond – [90], Δ – [101] и расчета: \square – [89].

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 том, что стабильность тока пучка протонов была на уровне 3 %. В итоге ошибка измерения относительной величины выхода γ -квантов, приведенная на рис. 29, не превышала 1 %. Измерение абсолютной величины выхода γ -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 γ -квантов из толстой литиевой мишени измерен с точностью, лучшей 15 %.

Сравним полученные результаты с измеренными ранее или расчетными. В работе [99] измеренный выход γ -квантов приведен равным $0,817 \cdot 10^7$ мкС⁻¹ при 1 МэВ, что в 1,67 раз больше измеренного нами, и $10,8 \cdot 10^7$ мкС⁻¹ при 1,7 МэВ, что в 1,78 раз больше измеренного нами. В работе [89] расчетный выход γ -квантов приведен равным $0,24 \cdot 10^7$ мкС⁻¹ при 1 МэВ, что в 2 раза меньше измеренного нами, и $5 \cdot 10^7$ мкС⁻¹ при 1,5 МэВ, что, наоборот, в 1,3 раз больше измеренного нами. В работе [90] измеренный выход γ -квантов приведен равным $6,283 \cdot 10^7$ мкС⁻¹ при 1,77 МэВ, что на 13 % меньше значения при 1,77 МэВ, экстраполируемого из наших измерений. В работе [101] измеренный выход γ -квантов приведен равным $5,66 \pm 0,2 \cdot 10^7$ мкКл⁻¹ при 1,67 МэВ, равный измеренному нами $5,77 \pm 0,07 \cdot 10^7$ мкКл⁻¹ при $1,672 \pm 0,002$ МэВ.

Затем на медную подложку мишени был напылен тонкий слой лития и измерен выход γ -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 [110]:

$$S = \frac{S_{low} \cdot S_{high}}{S_{low} + S_{high}} \text{ эВ}/(10^{15} \text{ атомов}/\text{см}^2),$$

где $S_{low} = 1,6 E^{0,45}$, $S_{high} = \frac{725,6}{E} \ln(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578 E)$, E берется в килоэлектронвольтах. Используя эту формулу, вычислим величину потери энергии протона на литии кристаллической плотности; она представлена на рис. 30. 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 x . Выход γ -квантов из тонкой литиевой мишени равен $Y_x = n x \sigma I / e$, где n – плотность атомных ядер лития ($4,59 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$), x – толщина лития, σ – сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$, I – ток

пучка протонов, e – заряд электрона. Так как измерение скорости счета линии 478 кэВ на тонкой и толстой мишенях проведено с шагом 25 кэВ, то скорость счета γ -квантов из толстой мишени Y_j можно определить из измеренной скорости счета на тонкой мишени Y_i как $Y_j = \sum_{i=0}^j Y_i \frac{25}{S_i(x)}$, где индекс i указывает на номер измерения ($i = 0$ при 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 x . На рис. 31 представлены две кривые скорости счета из толстой мишени, одна – измеренная, другая – восстановленная по вышеприведенной формуле при взятой толщине лития 2,1 мкм. В этом случае измеренная и восстановленная кривые совпадают наилучшим образом, значит, толщина лития равна $2,10 \pm 0,03$ мкм.

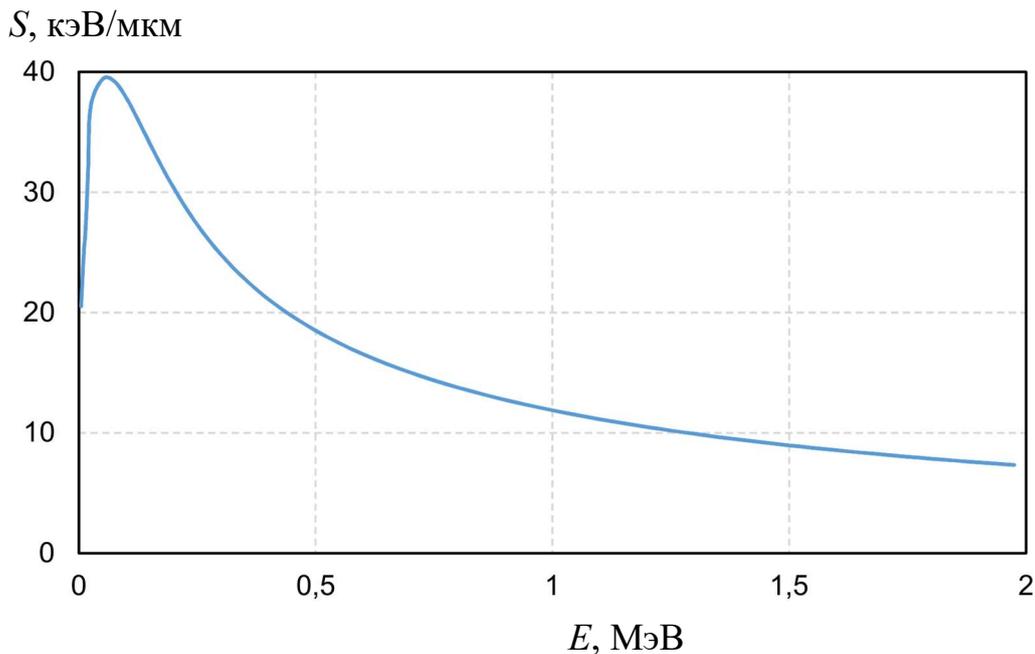


Рис. 30. Зависимость потери энергии протона S на литии от энергии протона E .

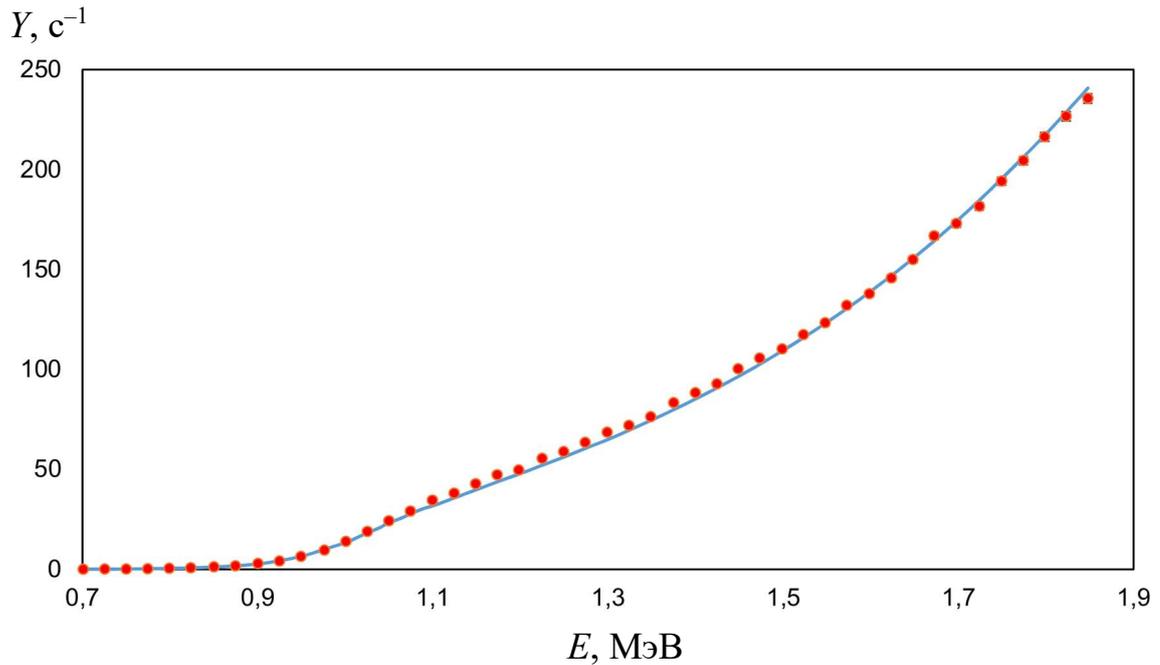


Рис. 31. Зависимость скорости счета γ -квантов энергией 478 кэВ от энергии протонов E : кружки – измеренная из толстой литиевой мишени, линия – восстановленная из измерений из тонкой литиевой мишени толщиной 2,1 мкм.

Поскольку толщина лития определена, измерение скорости счета γ -квантов энергией 478 кэВ позволяет определить сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$; оно представлено на рис. 32. Относительная погрешность измерений сечения, определяемая погрешностью скорости счета детектора и стабильностью тока, приведена на рис. 32; 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 на литиевом слое конечной толщины увеличивало неопределенность в определении энергии, которая в итоге составила от 0,4 до 1,2 %; она указана на рис. 32.

Обратим внимание на то, что измеренное нами сечение хорошо согласуется с наиболее свежими результатами, полученными Р. Матеусом и др. [106], если их данные умножить на коэффициент, равный 1/0,925, учитывающий процентное содержания изотопа литий-7 в природном литии.

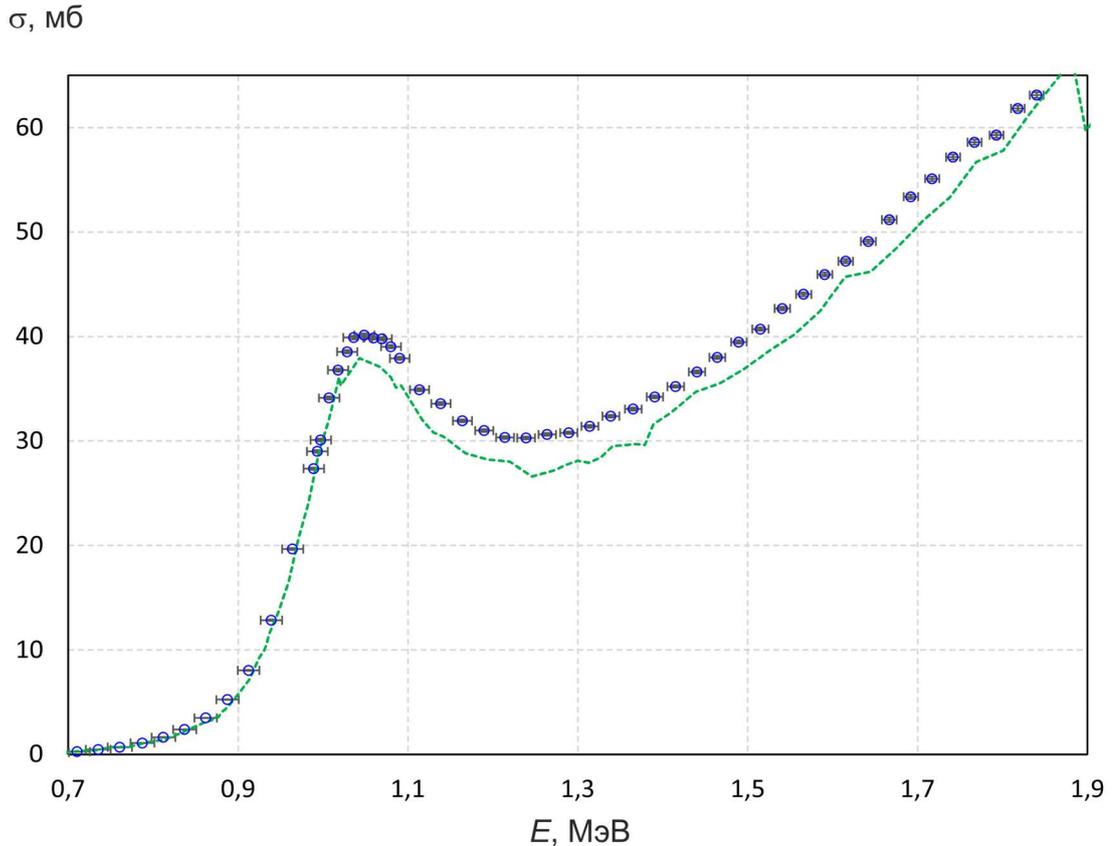


Рис. 32. Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$: \circ – измеренное, пунктирная линия – измерения, представленные в работе [106].

Сравним полученный результат с ранее измеренными (см. рис. 26). Результаты, полученные Брауном в 1951 г., отличаются по форме, сильно завышены, особенно в области малых энергий. Результаты В.Н. Кононова 1997 года [89] отличаются по форме и сильно завышены в области больших энергий. Три значения, представленные Мозером в 1954 г., систематически завышены на 6 %, что в пределах погрешности наших измерений. Результаты Прессера 1972 года завышены на 2-12% по сравнению с измеренными нами. Наиболее свежие результаты Матеуса практически полностью совпадают с полученными нами с учетом процентного содержания лития. Таким образом, можно утверждать, что из ранее измеренных результатов наиболее достоверными являются результаты измерений, проведенных Матеусом в 2002 году.

Положение В

Затем были проведены измерения в позиции В. Чувствительная часть HPGe спектрометра размещена на расстоянии 2,00 м под углом 15° (см. рис. 27).

Цель измерения состояла в проверке изотропности излучения фотонов. В работе [105] 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 [105], выход γ -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.

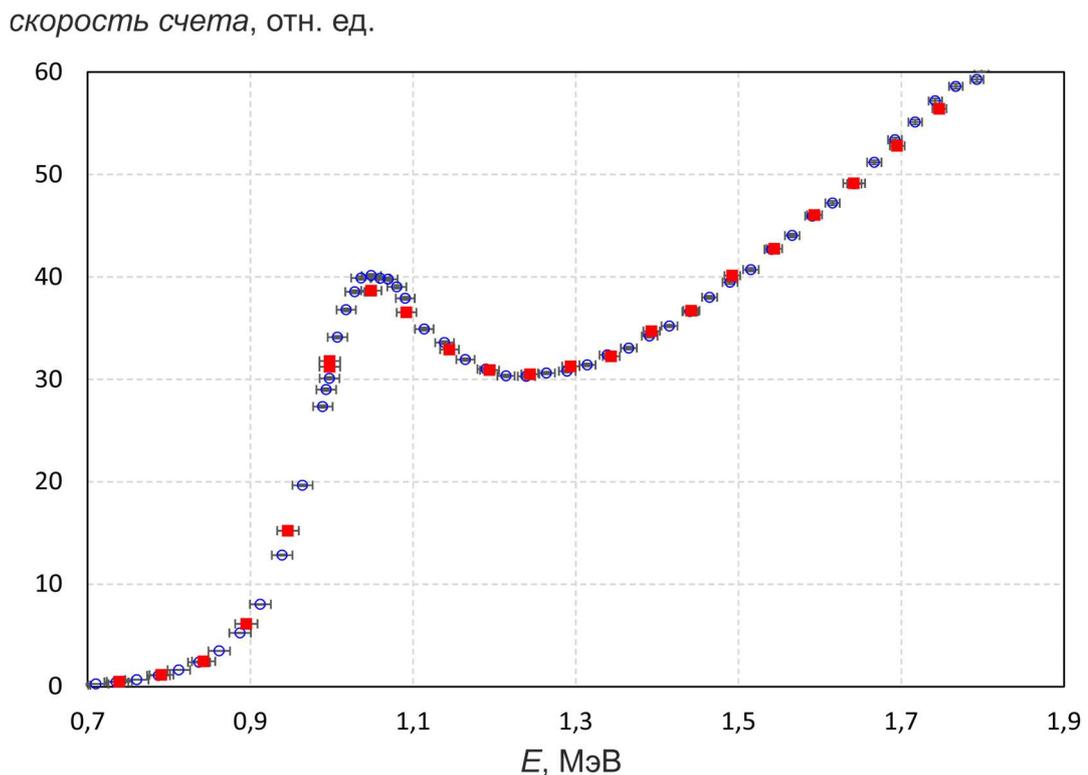


Рис. 33. Измеренная зависимость скорости счёта 478 кэВ фотонов из тонкой литиевой мишени от энергии протонов E : \circ – излучаемых в угол 110° , \square – 15° .

Зависимость интенсивности излучения фотонов на угол 15° от энергии протонов измерена как из тонкой литиевой мишени, так и из толстой. На рис. 33 приведена измеренная зависимость интенсивности излучения под углом 15° из

тонкой мишени вместе с ранее измеренной зависимостью излучения под углом 110° . Видно, что отличия от изотропии не наблюдается. Такой же результат получен при измерении интенсивности излучения из толстой мишени: увеличение энергии протонов с 1,4 до 1,8 МэВ увеличивает интенсивность излучения в $2,45 \pm 0,03$ раза как под углом 110° , так и под углом 15° , тогда как в статье [105] 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 478 кэВ фотонов при неупругом рассеянии протона на атомном ядре лития изотропно в исследуемом нами диапазоне энергий протонов.

Положение С

Так случилось, что после отправки в сентябре 2020 г. в г. Сямынь (Китай) собранного и протестированного источника нейтронов коллективу исследователей был предоставлен дополнительный бункер, соседний с тем, в котором размещается источник нейтронов и проводились исследования, описанные выше. 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 1,47 м было просверлено отверстие, направленное на литиевую мишень. Чувствительная часть HPGe γ -спектрометр при энергии ниже 1,882 МэВ размещена на расстоянии 4,83 м под углом 15° . При энергии протонов выше 1,882 МэВ использовали NaI γ -спектрометр в том же положении и HPGe γ -спектрометр, отнесенный дальше на 1,6 м и чувствительная часть спектрометра была обернута кадмием. Размещение спектрометров в отдельном помещении за толстой стеной позволило значительно уменьшить фоновый сигнал и снизить мертвое время HPGe спектрометра до значения, не превышающего 4 %. Характерные спектры измеряемых сигналов приведены на рис. 34.

скорость счета, отн. ед.

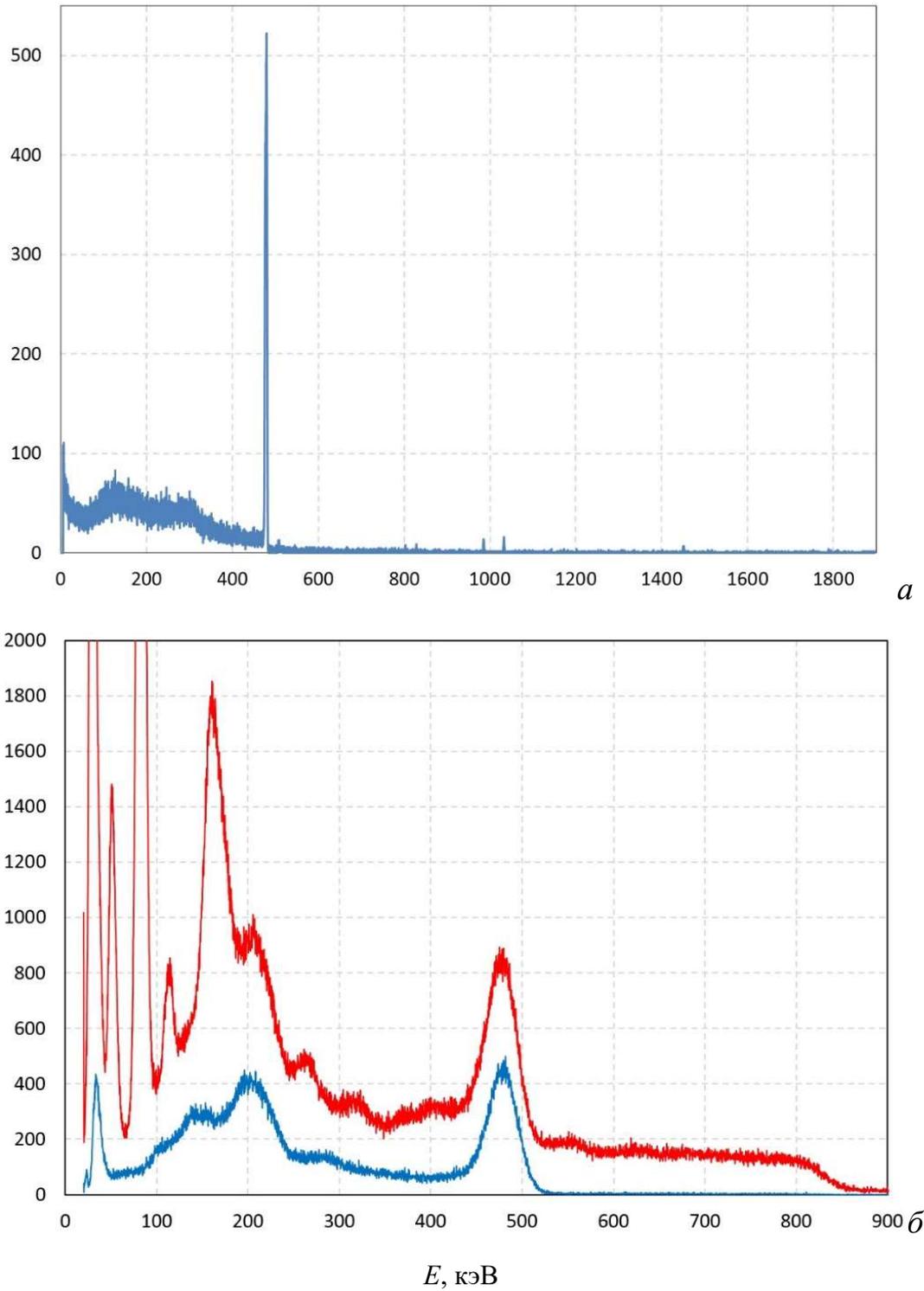
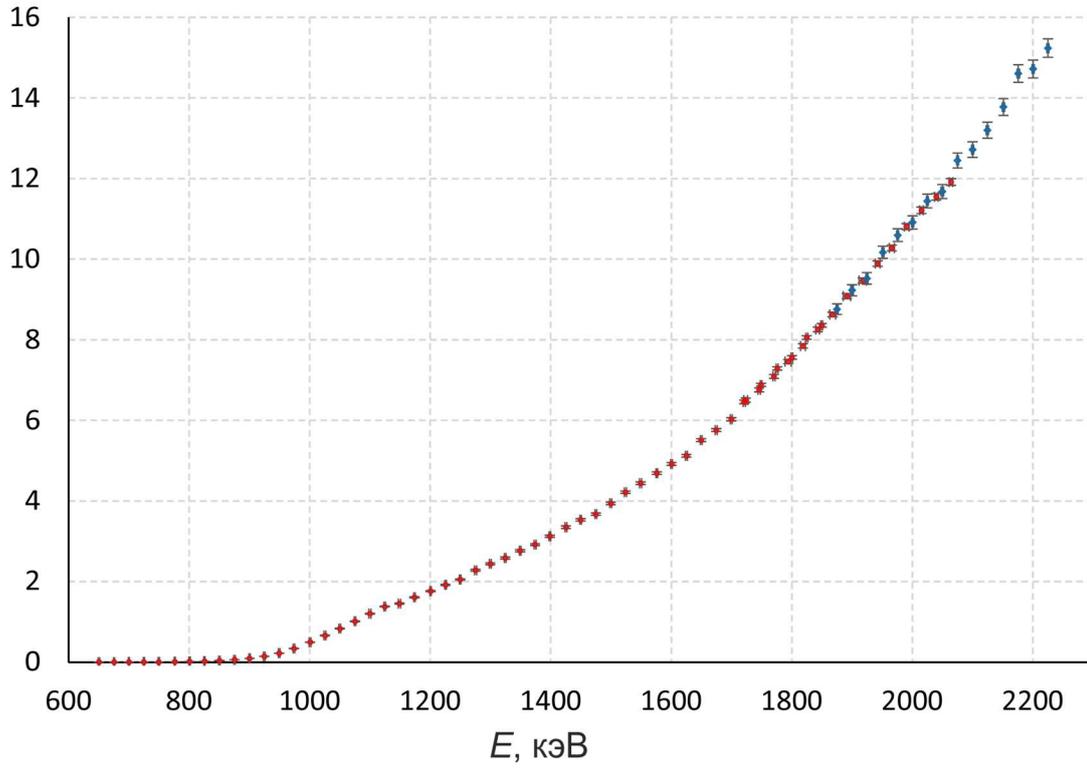


Рис. 34. Характерный сигнал HPGe γ -спектрометра при энергии протонов 1,8 МэВ (а) и NaI γ -спектрометра при 2,1 МэВ (верхняя кривая), 1,85 МэВ (нижняя кривая) (б).

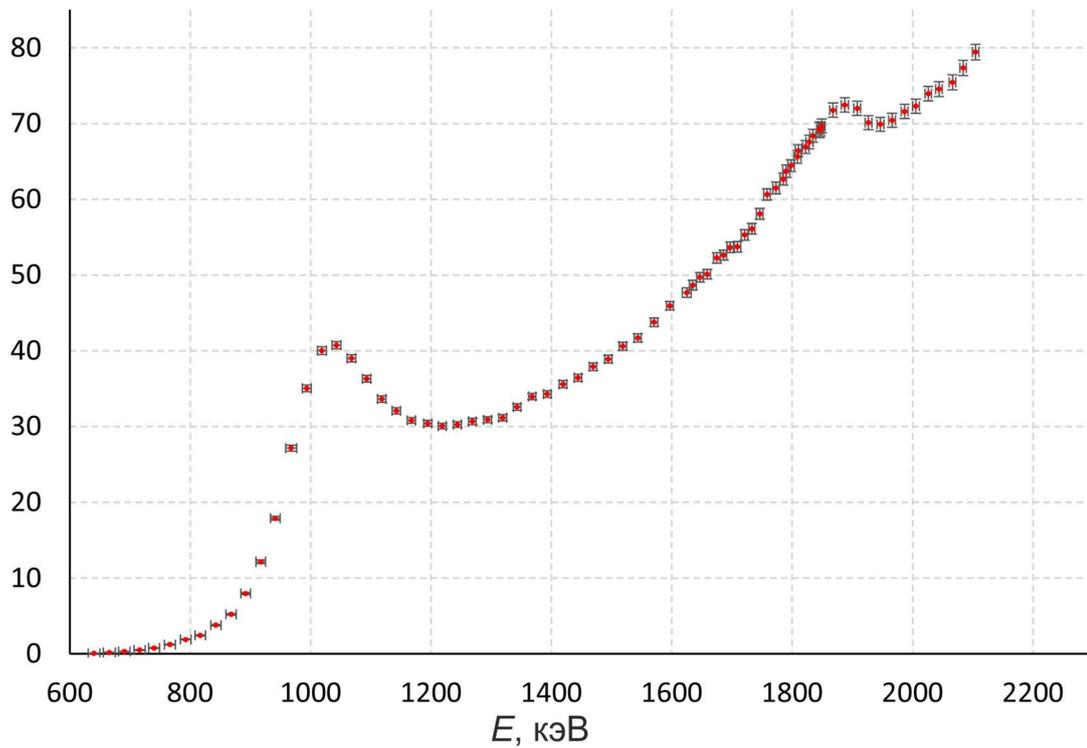
Калибровка спектрометров по абсолютной чувствительности осуществлена с помощью радиоактивных ядер ^{7}Be , наработанных в литиевой мишени в результате реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. В результате облучения мишени из природного лития пучком протонов с энергией 2100 ± 2 кэВ и флюенсом $3,602 \pm 0,003$ Кл было наработано $7,1 \cdot 10^{14}$ ядер ${}^7\text{Be}$ [111]. 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 напыляли 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 мишени интенсивность излучения растет с увеличением энергии протонов [111], 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 [112]. Оцененная таким образом толщина лития получилась равной $1,16 \pm 0,1$ мкм, что хорошо согласуется с предыдущим измерением.

Результаты измерения выхода 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени с природным содержанием изотопов лития и сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ представлена на рис. 35 и в Приложениях 1 и 2.

$\gamma, 10^7 \text{ 1}/\mu\text{Кл}$


a

 $\sigma, \text{мБ}$


б

Рис. 35. Измеренная зависимость выхода 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени с природным содержанием изотопов лития (а) и сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ (б) от энергии протонов E .

Сравнивая эти результаты с результатами, представленным в главе “Позиция 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 позиции 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.

§ 2.4. Определение эффективности применения тонкой литиевой мишени для подавления потока 478 кэВ фотонов из реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$

Численные значения выхода 478 кэВ фотонов из толстой и тонкой литиевой мишени представлены в Табл. 2. Видно, что, если вместо толстой литиевой мишени использовать тонкую, на выходе из которой энергия протонов будет 1,882 МэВ, то выход нежелательного потока γ -квантов уменьшается в 5,2 раза при энергии протонов 2 МэВ (с $10,9 \cdot 10^7$ 1/мкКл до с $2,1 \cdot 10^7$ 1/мкКл), в 3,3 раза при 2,1 МэВ, в 2,5 раза при 2,2 МэВ и в 2,1 раза при 2,3 МэВ.

Табл. 2. Зависимость выхода 478 кэВ γ -квантов из толстой и тонкой литиевой мишени от энергии протонов.

Энергия протонов, МэВ	Выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени, 10^7 1/мкКл	Выход 478 кэВ фотонов из тонкой литиевой мишени, 10^7 1/мкКл
1,882	8,8	0
2	10,9	2,1
2,1	12,7	3,9
2,2	14,7	5,9
2,3	16,9 ²	8,1

При использовании тонкой литиевой мишени дополнительный вклад в дозу γ -излучение будет давать процесс поглощения протона в конструкционных материалах, результаты исследования которого представлены в Табл. 1, § 2.2. Напомним, что толщина литиевого слоя была 50 мкм и на такой толщине протон

² Получено экстраполяцией выхода, измеренного при энергии 2,225 МэВ, с использованием сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ из работы [106].

тормозится с энергии 2 МэВ до 1,625 МэВ. Из рис. 35 получим, выход γ -квантов из литиевой мишени толщиной 50 мкм при начальной энергии 2 МэВ равен $5,7 \cdot 10^7$ 1/мкКл. Как видно из Табл. 1, поглощение 2 МэВ протона в алюминии по сравнению с поглощением в 50 мкм литии сопровождается в 5 раз меньшим уровнем мощности γ -излучения, в меди – в 8,3 раза, в молибдене и тантале – более чем в 125 раз. Если для оценки предположить, что выход γ -квантов пропорционален дозе и энергия протонов не 2 МэВ, а 1,882 2 МэВ, то получим дополнительный выход γ -квантов из алюминия $1 \cdot 10^7$ 1/мкКл, из меди – $0,6 \cdot 10^7$ 1/мкКл, из молибдена или тантала – менее $0,04 \cdot 10^7$ 1/мкКл. Видно, что дополнительное излучение из молибдена и тантала пренебрежимо мало, а из меди немного уменьшает эффект тонкого лития: выход нежелательного потока γ -квантов уменьшается в 4 раза при энергии протонов 2 МэВ (с $10,9 \cdot 10^7$ 1/мкКл до с $2,7 \cdot 10^7$ 1/мкКл), в 2,8 раза при 2,1 МэВ, в 2,3 раза при 2,2 МэВ и в 2 раза при 2,3 МэВ.

§ 2.5. Выводы

На ускорительном источнике нейтронов ИЯФ СО РАН проведено облучение 2 МэВ протонами образцов, изготовленных из лития, графита, алюминия, титана, ванадия, нержавеющей стали, меди, молибдена и тантала. Измерены мощность дозы и спектр рентгеновского и γ -излучения, мощность дозы нейтронного излучения и активация. Установлено, что поглощение 2 МэВ протонов в ванадии, нержавеющей стали и титане ведет к нежелательной генерации быстрых нейтронов, а поглощение протонов в графите и титане – к активации металлов.

Используя возможность ускорителя получать протоны в широком диапазоне энергий и применяя разработанную технологию контролируемого напыления литиевого слоя толщиной от 1 до 300 мкм измерено сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени в диапазоне энергий протонов от 0,65 до 2,225 МэВ.

Полученные данные позволили определить во сколько раз в зависимости от энергии протонов и материала подложки мишени уменьшается выход нежелательного γ -излучения без уменьшения выхода нейтронов, если применять тонкую литиевую мишень вместо толстой.

Результаты проведенных исследований доложены на XXIV Всероссийской конференции по ускорителям заряженных частиц (Обнинск, Россия, 2014) [12], на XVI Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии (Хельсинки, Финляндия, 2014) [17], на 8-й Школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Павия, Италия, 2015) [20] и сессии-конференции Секции ядерной физики Отделения физических наук РАН (Новосибирск, 2020). Результаты работ опубликованы в рецензируемых научных журналах из списка ВАК [8, 9, 10] и в трудах конференции [12].

Глава 3

Радиационный блистеринг металлов при имплантации 2 МэВ протонов

В Главе 1 отмечено, что наилучшее для БНЗТ качество терапевтического пучка нейтронов получают при генерации нейтронов в результате пороговых реакций ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ или ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ [3, 4]. В Главе 2 обосновано, что для значительного уменьшения нежелательной дозы от γ -квантов поглощение протонов с энергией ниже порога генерации нейтронов следует осуществлять не в литии, а в таких конструкционных материалах, как медь, тантал или алюминий. Основные потери энергии протонов обусловлены процессом ионизации атомов вещества, сечение которого растёт с падением энергии, вследствие чего основную часть энергии протон теряет перед моментом остановки (пик Брэгга) (см. Рис. 30). Торможение протонов с энергиями порядка 2 МэВ происходит практически по прямой – их полный и спроецированный пробег различаются не более, чем на несколько процентов. Так, пробег протонов с энергией 2 МэВ в Li имеет величину 160 мкм, Be – 50 мкм, Al – 44 мкм, Cu – 19 мкм [110]. По мере облучения в месте остановки протонов происходит агломерация захваченных атомов газа, приводящая к образованию газовых пузырьков. При насыщении количества имплантированного газа, захваченного в твёрдом теле, поверхностный слой может деформироваться вплоть до образования блистеров (пластиночные куполообразные вспучивания поверхностного слоя) и отслаивания чешуек из-за повышения внутреннего давления газа и боковых напряжений сжатия. Считается,

что появление развитой поверхности металла (блистеринг) делает мишень непригодной к эксплуатации, как отмечено в работах [113-115], или может ограничивать время эксплуатации, как отмечено в работах [116, 117], или создает проблемы для клинического применения, как указано в работе [118, 119]. Для решения проблемы блистеринга, важность которой подчёркивается во всех работах, предлагаются различные решения. Это использование мишени с толщиной меньше длины пробега протонов, как в проекте C-BENS с очень высокой энергией протонов. В Бирмингеме и в Обнинске, наоборот, делают литий толстым, чтобы в нём останавливались протоны. В большинстве же проектов между нейтроногенерирующим слоем и теплоотводящей медной подложкой размещают тонкий слой металла, наиболее стойкий к радиационному блистерингу.

В главе 3 приведён обзор литературных данных по радиационному блистерингу, обоснована необходимость определения порога образования блистеров при имплантации 2 МэВ протонов, описан стенд, созданный для проведения исследований, приведены результаты *in-situ* наблюдения динамики образования блистеров на поверхности образцов и результаты исследования поверхности облученных образцов. Приведено измеренное значение порога образования блистеров в меди и тантале и обсуждены результаты исследования применительно к проблеме БНЗТ.

§ 3.1. Обзор исследований по радиационному блистерингу

Проблема радиационного блистеринга достаточно подробно освещена в работах [120-122].

В работе 1977 г. [120] Ю.В. Мартыненко отметил, что «радиационный блистеринг рассматривается как один из опаснейших механизмов разрушения первой стенки термоядерного реактора», и указал, что «скорость уноса вещества при блистеринге определена лишь в нескольких конкретных случаях, а теоретически блистеринг исследован ещё меньше». Явление блистеринга было так описано в этой работе: «... внедренные атомы гелия создают на некоторой глубине избыточное давление, в результате чего над поверхностью происходит выпучивание материала (в виде пузырей) за счёт пластической деформации. Затем при увеличении давления происходит разрыв выпученных пузырей и часть крышек отрывается. Затем растут новые пузыри и т.д.».

В работе [121] даны определения, которых будем придерживаться: «Блистеры представляют собой пластиночные куполообразные вспучивания поверхностного слоя, контуры которых имеют преимущественно круглую форму. Чешуйки представляют собой довольно однородные по толщине поверхностные пленки, которые отслаиваются от бомбардируемой поверхности и иногда скручиваются, подобно краям ковра. Поры появляются при имплантации больших флуенсов вследствие миграции газовых пузырьков к поверхности. Края пор либо скруглены, либо вытянуты вдоль кристаллографических направлений». В этой работе сказано, что «для появления блистеров или начала отшелушивания необходима некоторая минимальная доза облучения ионами плохорастворимого газа. Эта минимальная доза называется критической дозой образования блистеров. Она растёт с ростом энергии, а также с увеличением растворимости газа». В этой работе приведён график зависимости критической дозы блистерообразования для

ниобия от энергии ионов гелия E – она растёт как $E^{0,4}$. Также в этой работе приведён график зависимости критической дозы блистерообразования от температуры мишени, демонстрирующий различия в порядок величины.

Наиболее полным обзором можно считать работу [122], содержащую большой список статей с экспериментальными результатами наблюдения блистеров, преимущественно полученных при изучении распыления металлов ионами с энергией в десятки и сотни килоэлектронвольт. В работе даны определения радиационному блистерингу, приведён общий очерк, исторический обзор, представлены результаты экспериментальных наблюдений, рассмотрены различные модели образования блистеров, сделана попытка выявить закономерности. В этой работе перечислены факторы, влияющие на поверхностную структуру, создаваемую ионами газа. Это факторы, связанные с мишенью: материал и состав, температура, метод изготовления и подготовки, размер кристаллических зёрен, концентрация повреждений, включения, модуль упругости, модуль сдвига, внутренние напряжения, ориентация кристаллитов, шероховатость поверхности. Это факторы, связанные с ионами: сорт, энергия, плотность потока, флюенс, угол падения. Это факторы, связанные с системой газ–твёрдое тело: растворимость, коэффициент диффузии, фазовое состояние. Всего 21 фактор, что объясняет зачастую громадный разброс данных и сложность создания теории.

Обобщая информацию из работ [120-122], выделим главное. При флюенсах облучения мишени $10^{14} - 10^{17}$ ион см^{-2} происходит агломерация захваченных атомов газа, приводящая к образованию газовых пузырьков и объёмному расширению материала (вплоть до 10 – 15 %). При дальнейшем облучении ($10^{17} - 10^{20}$ ион см^{-2}) достигается насыщение количества имплантированного газа, захваченного в твёрдом теле, и поверхностный слой может деформироваться вплоть до образования блистеров и отслаивания чешуек из-за повышения внутреннего давления газа и боковых напряжений сжатия. Критическая доза образования водородного блистеринга даётся значениями $10^{18} - 10^{19}$ ион/ см^2 .

Подчеркивается, что водородный блистеринг наблюдается в основном для металлов, плохо растворяющих водород (Al, Mo, Fe, Cu, Ag, W, Pt и Au). На металлах, хорошо растворяющих водород (щелочные, щелочноземельные, Ti, Ta, Nb, V, Ni, Pd), как правило, водородный блистеринг не наблюдается.

При токе 10 мА и диаметре мишени 10 см поток частиц равен $8 \cdot 10^{14}$ ионов $\text{см}^{-2} \text{с}^{-1}$. Нижняя граница по водородному блистерингу величиной 10^{18}см^{-2} достигается примерно за 20 мин, что меньше планируемого времени облучения, и блистеринг может существенно ограничить использование ряда материалов в качестве мишени. Как уже подчеркивалось во введении Главы 3, блистеринг ограничивает время эксплуатации мишени [113-118].

Экспериментальные данные о водородном блистеринге при энергии 2 МэВ крайне скудны. Перечислим те немногочисленные данные о водородном блистеринге, полученные в условиях, близких к интересующим нас – энергия ионов 2 МэВ, температура металла в районе 150 °С.

В работе [123] обнаружено, что при облучении 325 кэВ протонами блистеры появляются на поверхности меди, начиная с флюенса $5,2 \cdot 10^{18} \text{см}^{-2}$.

В работе [124] отмечено, что при облучении 1,76 МэВ протонами блистеринг наблюдается на золоте при флюенсе $8 \cdot 10^{18} \text{см}^{-2}$ и не наблюдается на тантале при флюенсе 10^{19}см^{-2} .

В начале 2000-х гг. изучение блистеринга было проведено в Университете Намур (Бельгия) при облучении металлов протонами с энергией 1,85 МэВ, токе 4 – 7 мкА, размере пучка от 0,01 до 0,1 мм^2 . Результаты исследования не опубликованы, но проф. С. Лукасом (S. Lucas) представлены моему научному руководителю. В проведённых исследованиях с пучком малого размера выяснено, что на Cu, Al и W, пузырьки появляются с флюенса $2 \cdot 10^{19} \text{см}^{-2}$. На палладии при флюенсе $6 \cdot 10^{19} \text{см}^{-2}$ не было блистеринга, но он наблюдается при $2 \cdot 10^{20} \text{см}^{-2}$. На V, Fe и Ta блистеринг не наблюдался при облучении до флюенсов $6 \cdot 10^{19} \text{см}^{-2}$, 10^{21}см^{-2} и $1,6 \cdot 10^{21} \text{см}^{-2}$ соответственно.

В работе [79], выполненной по заказу компании IBA (Бельгия), пучком протонов с энергией от 100 до 200 кэВ облучали образцы меди, вольфрама, железа, палладия, ванадия и тантала. На мишень (образец) под углом направляли лазерный луч и фотодиодом измеряли интенсивность света, зеркально отраженного от мишени, а CCD-камерой или фотодиодом измеряли интенсивность диффузно отраженного света. Из динамики этих сигналов определяли порог образования блистеров. Он получился равным $0,1-0,4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ для меди, $2-4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ для вольфрама, $80-150 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ для железа, $200-300 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ для палладия, более $120 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ для ванадия и более $230 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ для тантала.

В работе [115] пучком отрицательных ионов водорода с энергией 750 кэВ облучали поверхность меди чистотой 99,99 % и регистрировали отраженное излучение лазера. Через 40 мин облучения (флюенс $0,37 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$) наблюдалось набухание образца, а через 1,5 ч облучения (флюенс $0,9 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$) зарегистрировано уменьшение амплитуды отраженного сигнала. В работе было подчеркнуто, что при этом флюенсе наблюдается уменьшение сигнала, но точно определить порог образования блистеров этой методикой сложно.

В Табл. 3 сведены воедино данные о пороге образования блистеров при имплантации ионов водорода и приведено расчётное значение порога при энергии 2 МэВ, полученное экстраполяцией данных в предположении зависимости от энергии как $E^{0,4}$. Видно, что расчётные значения порога образования блистеров различаются на 2 порядка. Время, через которое появятся блистеры на медной мишени диаметром 10 см при ее облучении 2 МэВ протонами с током 10 мА, прогнозируется от 5 минут, что явно недостаточно для проведения терапии, до 3 ч 20 мин, что уже достаточно для терапии 5 пациентов.

Табл. 3. Измеренный в ряде работ порог образования блистеров в меди при облучении ионами водорода и расчётное значение порога для 2 МэВ протонов.

Источник	Энергия протонов, кэВ	Порог образования блистеров, 10^{18} см^{-2}	Порог образования блистеров при 2 МэВ, 10^{18} см^{-2}

[123]	325	5,2	10
Бельгия	1850	20	20
[79]	100-180	0,1-0,4	0,25-1
[115]	750	0,9	1,3

Отсутствие достоверных данных о пороге образования блистеров при имплантации 2 МэВ протонов и критически большой разброс оценок этой величины требуют дополнительных исследований по изучению блистеринга для выбора оптимального материала поглотителя пучка.

§ 3.2. Стенд для проведения исследований

Экспериментальные исследования по изучению блистеринга проведены на ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией [71], обеспечивающем получение протонного пучка энергией 2 МэВ, током до 10 мА, поперечным размером порядка 1 см. Схема ускорителя представлена на Рис. 14, фотография экспериментальной установки – на Рис. 36.

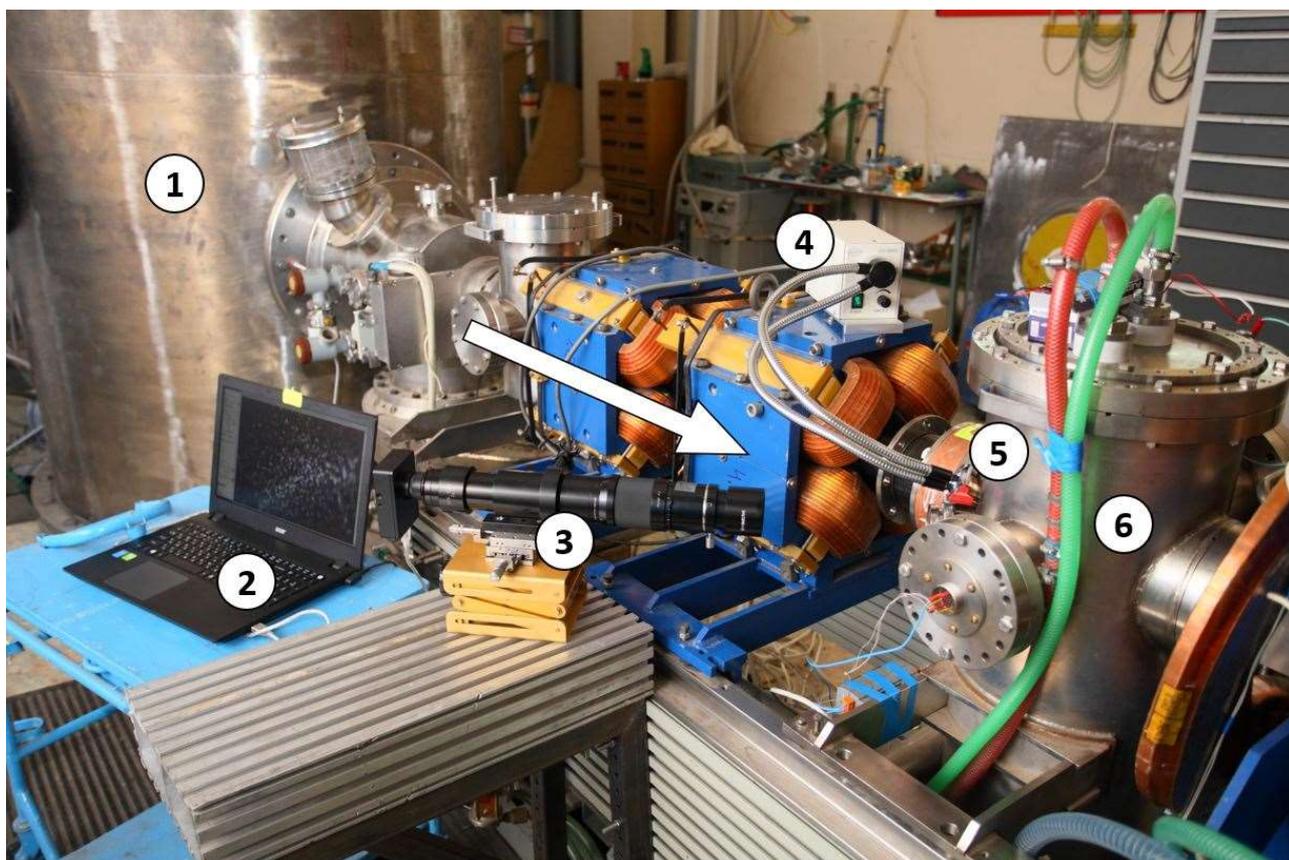
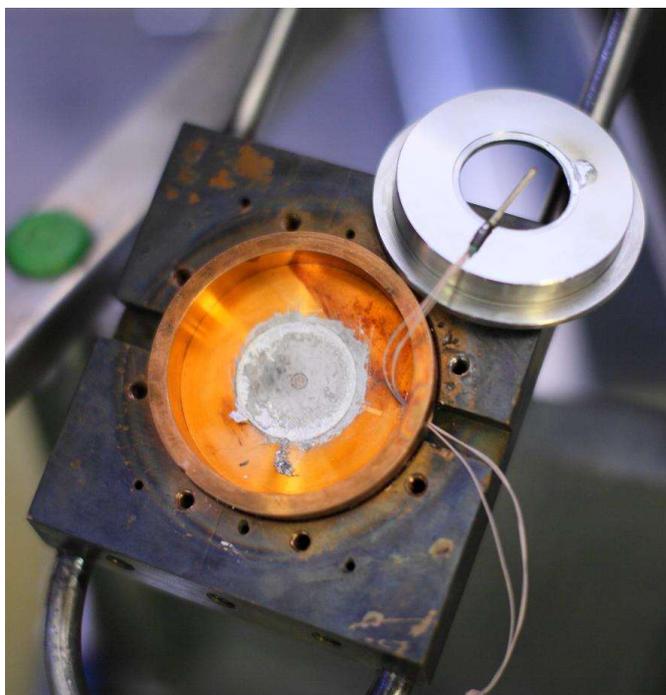


Рис. 36. Экспериментальная установка: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – компьютер, 3 – дистанционный микроскоп с CCD камерой, 4 – подсветка, 5 – окно из плавленного кварца, 6 – диагностическая вакуумная камера. Стрелкой схематически показано направление распространения 2 МэВ протонного пучка.

В диагностический бак тракта транспортировки пучка протонов (6 на Рис. 36) на оси размещали образец, выполненный в форме диска диаметром 30 мм, толщиной 3 мм. Образец через сплав галлия-индия плотно прижимали к теплоотводящей поверхности и облучали протонами. В первой серии экспериментов в качестве теплоотводящей поверхности использовали узел охлаждения графитовой мишени (Рис. 37а), разработанный и использованный при проведении экспериментов по обнаружению азотсодержащих веществ методом γ -резонансного поглощения [125]. Во второй серии экспериментов была применена новая теплоотводящая поверхность, выполненная в виде медной пластины с близкорасположенными отверстиями для протекания охлаждающей жидкости, внутрь которых были вставлены стержни с резьбой для завихрения потока воды (Рис. 37б). Такая конструкция позволила существенно улучшить теплосъем 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°C.



а



б

Рис. 37. Фотографии теплоотводящей поверхности, использованной в первой серии экспериментов (а) и во второй (б).

Температуру образца с точностью $1\text{ }^{\circ}\text{C}$ измеряли платиновым терморезистором Pt100 (ЧЭПТ-1; ООО “Термико”, Зеленоград), 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 измеряли пирометром Optris CT Laser 3ML SF (Optris, GmbH, Германия) через окно из плавленого кварца и, во второй серии экспериментов, – дополнительно инфракрасной камерой (тепловизором) FLIR T650SC (FLIR Systems Inc., США) через окно из фторида бария. Калибровка пирометра и инфракрасной камеры в диапазоне от 100 до 250 $^{\circ}\text{C}$ осуществлена путём 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 $^{\circ}\text{C}$). Поскольку размер пятна превышает размер пучка протонов, то пирометр даёт заниженные показания. Показания пирометра на медных образцах дополнительно занижены на $\sim 40\text{ }^{\circ}\text{C}$ 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, осуществляли 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 была установлена медная охлаждаемая диафрагма с диаметром отверстия 26 мм. Измерения температуры четырьмя терморезисторами Pt100 (ЧЭПТ-1), вставленными внутрь диафрагмы и равномерно разнесенными по азимуту, позволяли контролировать распространение пучка протонов по оси установки.

Непрерывное наблюдение в реальном времени за поверхностью образца проводили CCD камерой (Mightex CCD CXE-C013-U; Mightex Systems, Торонто, Канада) с дистанционным микроскопом Infinity K2 (DistaMax™, Infinity Photo-optical Co., США) (3 на Рис. 36), установленной под углом 42° к нормали поверхности образца, через окно из плавленого кварца (5 на Рис. 36). Расстояние от поверхности передней линзы микроскопа до образца было 330 мм. Микроскоп откалиброван с помощью перекрестия из проволоки толщиной 100 мкм; разрешение составило 260 лин/мм. Образцы через дополнительное окно из плавленого кварца подсвечивали галогенной лампой источника света LFP-10WP-R (Shibuya, Япония) мощностью 10 Вт (4 на Рис. 36). Рядом с CCD-камерой размещен компьютер (2 на Рис. 36), используемый для сбора данных с камеры, сохранения изображений в локальную базу данных и отображения состояния мишени в реальном времени.

После облучения образцы исследовали 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 (Jeol, Япония) и на электронном микроскопе со сфокусированным ионным пучком FIB-SEM Helios G3 UC (FEI, США).

§ 3.3. Экспериментальные результаты. Серия I

В первой серии экспериментов были исследованы 4 образца, три из них изготовлены из различной меди: медь марки M0 (ГОСТ 859-2014, Россия), мелкозернистая медь чистотой 99,996 % (OFC-1 JIS H3150 C1011, SH Copper Products Co., Ltd, Япония) и крупнозернистая медь чистотой 99,99996 % (High Purity Copper, Mitsubishi Materials Co., Япония). Размер зёрен был 0,2 мм для мелкозернистой меди и 30 мм для крупнозернистой. Четвёртый образец изготовлен

из тантала. Образцы отполированы до зеркальной поверхности оптического качества с помощью алмазной полировки. Медные образцы были подвергнуты воздействию протонного пучка энергией 2 МэВ, током 0,6 мА в течение 3 ч, их температура была 263 ± 15 °С. Танталовый образец облучали протонным пучком с током 0,45 мА в течение 4 ч, его температура была 600 °С. Во всех случаях стремились получить одинаковый интеграл тока; он составил величину $1,81 \pm 0,03$ мА · ч.

Поперечный размер пучка определён тремя способами. В первом способе протонным пучком облучали титановый образец без обеспечения хорошего теплового контакта с теплоотводящей поверхностью; через непродолжительное время в образце получилось отверстие диаметром 11 мм. Во втором способе обеспечили хороший тепловой контакт титанового образца с теплоотводящей поверхностью и не допустили прожигания отверстия и распыления титана. Поскольку взаимодействие протонов с титаном приводит к наработке радиоактивных изотопов ванадия с периодами полураспада 33 мин, 16 и 330 дней, то область под пучком становится радиоактивной. Ее размер был определен измерением активности образца NaI γ -спектрометром путём 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, реализованном во второй серии экспериментов и подробно описанном ниже (см. Рис. 52), 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 мм². Принимая площадь пучка равной 75 мм², получим, что 1 мА · ч интеграла тока соответствует флюенсу частиц $3 \pm 0,3 \cdot 10^{19}$ см⁻². Т.о, считаем, что образцы в первой серии экспериментов были облучены до флюенса $5,4 \cdot 10^{19}$ см⁻².

Образцы из меди марки М0 и из мелкозернистой меди чистотой 99,996 % под действием протонного пучка вели себя схожим образом: первые блистеры стали появляться при флюенсе около $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, а при флюенсе $5,4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ вся поверхность образца была плотно покрыта блистерами. На Рис. 38 приведены фотографии, демонстрирующие динамику блистерообразования. На Рис. 39 представлены фотографии облученной поверхности, сделанные на лазерном микроскопе. Видно, что блистеры имеют размер от 50 до 150 мкм и приподняты на высоту порядка 10 мкм. При этом, наибольшее приподнятия у некоторых блистеров наблюдается на периферии (Рис. 39*з*), в то время как у других – по центру (Рис. 39*е*).

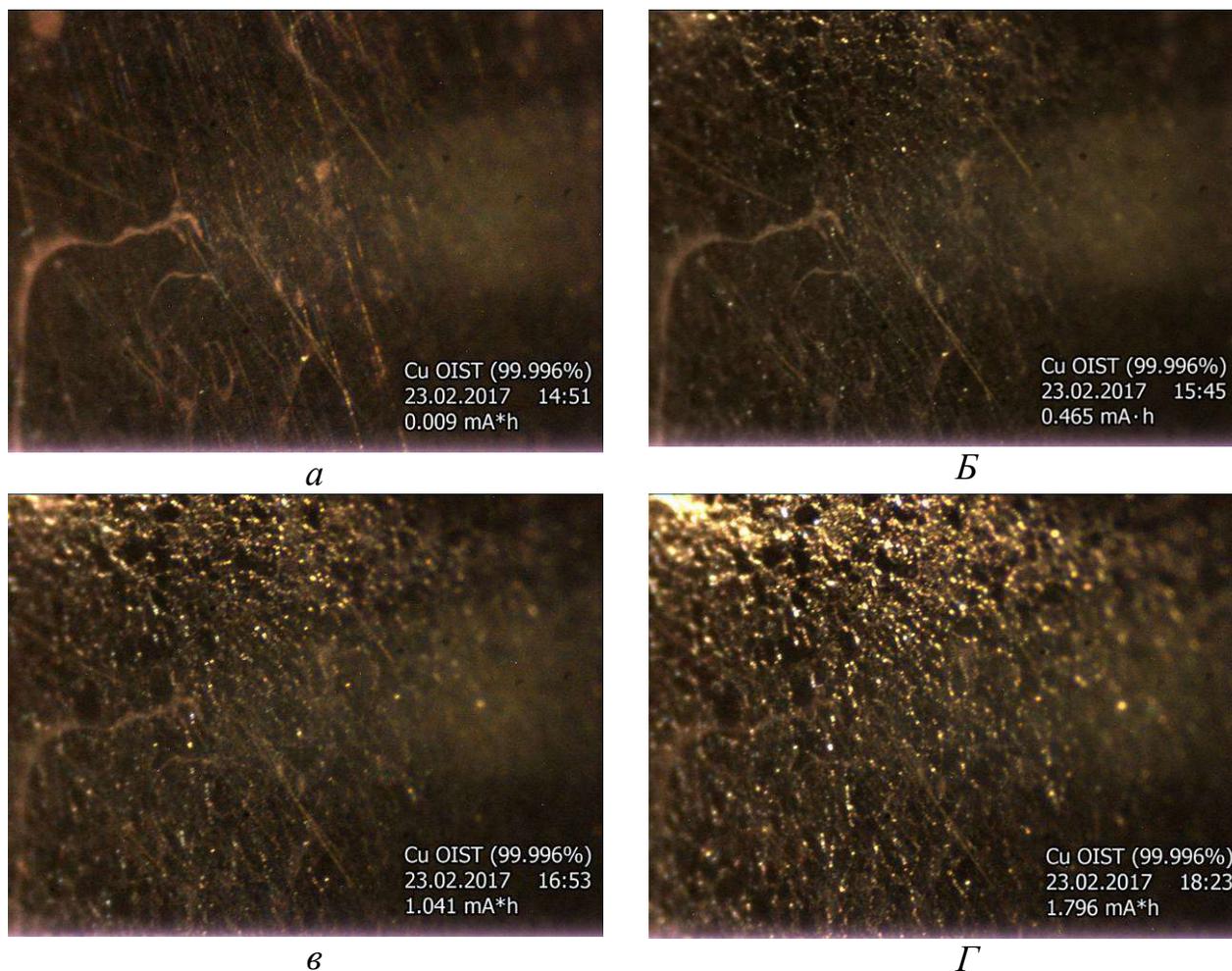


Рис. 38. Изображение поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,996 %, облученной 2 МэВ протонами с флюенсом 0,09 МА·ч (*а*), 0,465 МА·ч (*б*), 1,041 МА·ч (*в*), 1,769 МА·ч (*г*). Размер кадра 9 мм по горизонтали и 4 мм по вертикали.

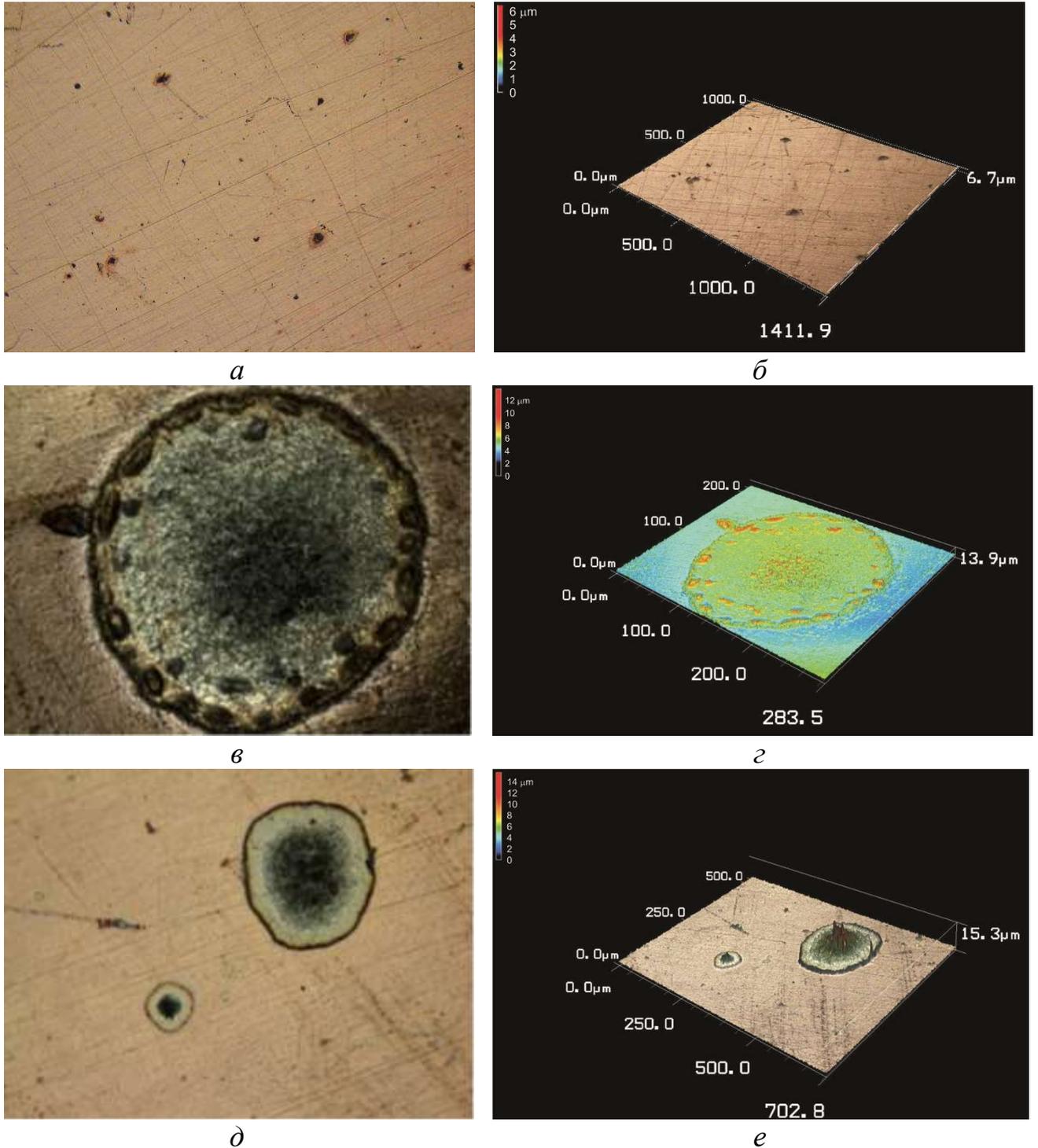


Рис. 39. Фотографии поверхности меди марки М0, полученные на лазерном микроскопе, и результаты их обработки: *a, б* – необлученной, *в-е* – облученной. Размер кадра $1411,9 \times 1000 \text{ мкм}^2$ (*a* и *б*), $283,5 \times 200 \text{ мкм}^2$ (*в* и *з*), $702,8 \times 500 \text{ мкм}^2$ (*д* и *е*); высота $6,7 \text{ мкм}$ (*б*), $13,9 \text{ мкм}$ (*з*), $15,3 \text{ мкм}$ (*е*).

Образец из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % вел себя совершенно по-другому. На Рис. 40 приведены фотографии поверхности образца при разных флюенсах облучения. Видно, что блистеров в виде пузырьков на поверхности не образуется, поверхность под действием облучения трескается. Трещины начинают появляться при флюенсе $3 \cdot 10^{19}$ см⁻². Отчетливо трещины видны на снимках лазерного микроскопа (Рис. 41).

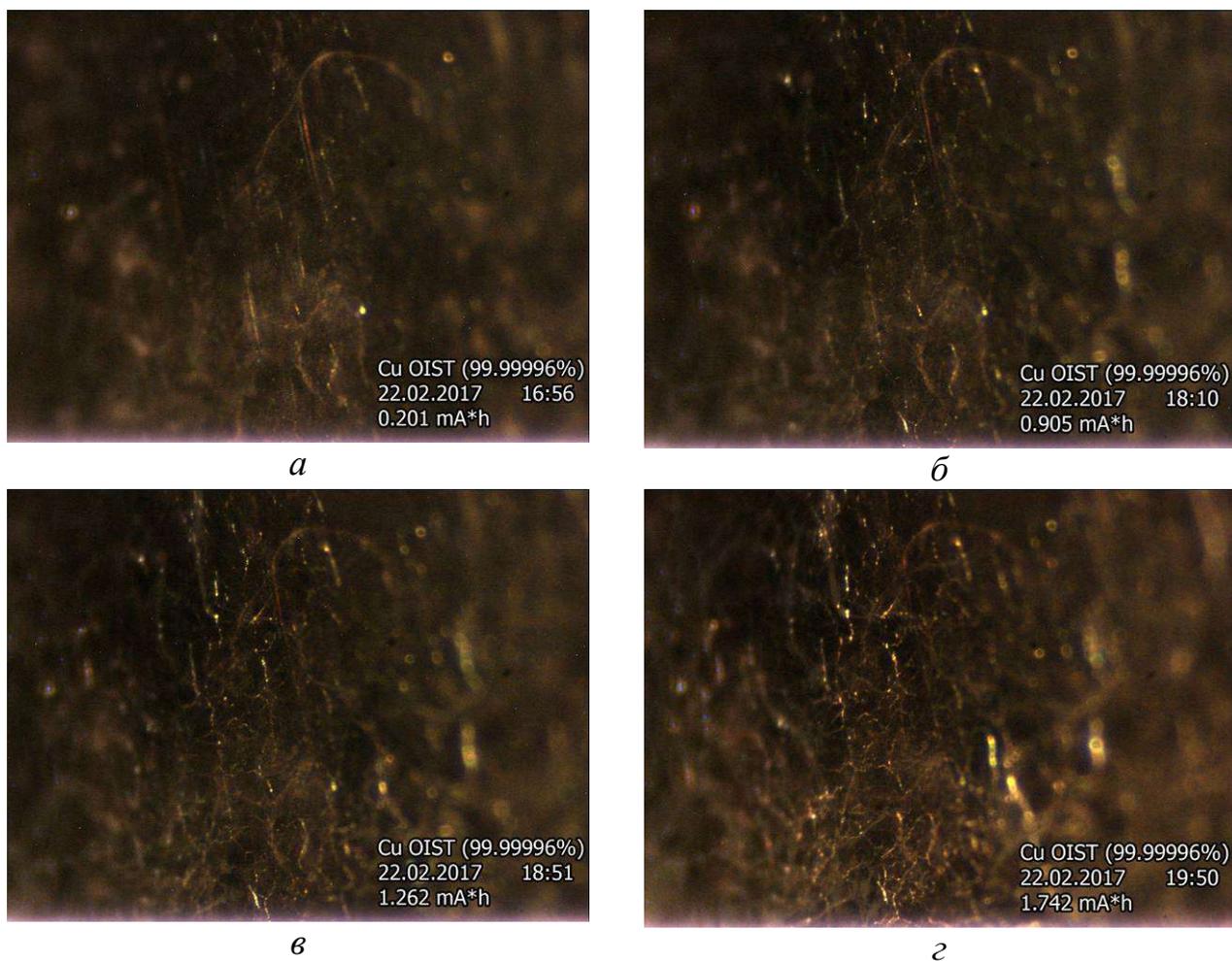


Рис. 40. Изображение поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 %, облученной 2 МэВ протонами с флюенсом 0,201 мА·ч (*a*), 0,905 мА·ч (*б*), 1,262 мА·ч (*в*), 1,742 мА·ч (*г*). Размер кадра 9×4 мм².

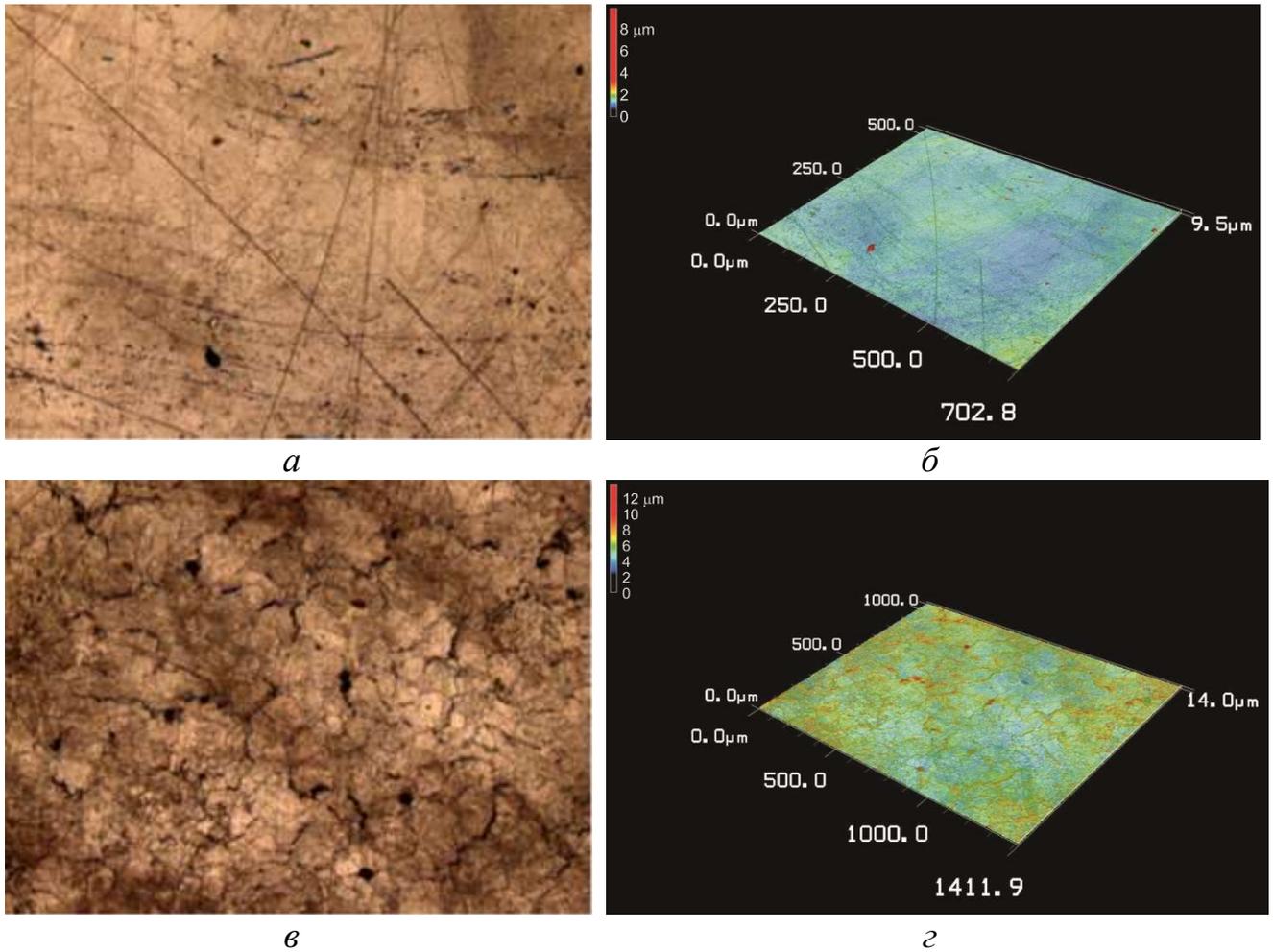


Рис. 41. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996%, полученные на лазерном микроскопе, и результаты их обработки: *а*, *б* – необлученной, *в*, *з* – облученной. Размер кадра $702,8 \times 500$ мкм² (*а* и *б*), $1411,9 \times 1000$ мкм² (*в* и *з*); высота 9,5 мкм (*б*), 14 мкм (*з*).

На танталовом образце свидетельств блистерообразования не наблюдалось до набранного флюенса $5,4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ (Рис. 42).

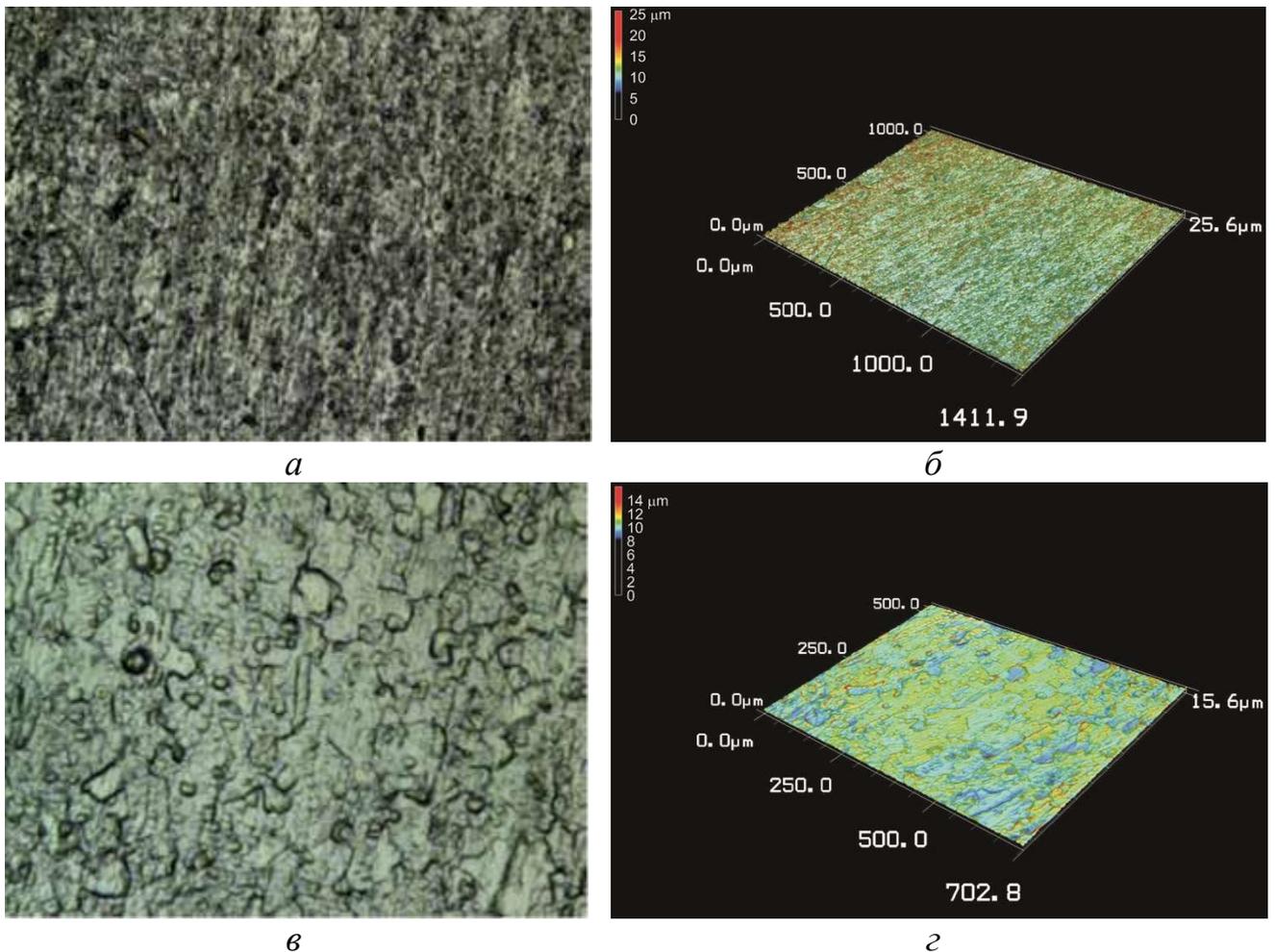


Рис. 42. Фотографии поверхности тантала, полученные на лазерном микроскопе, и результаты их обработки: *а, б* – необлученной, *в, г* – облученной. Размер кадра $1411,9 \times 1000 \text{ мкм}^2$ (*а* и *б*), $702,8 \times 500 \text{ мкм}^2$ (*в* и *г*); высота $25,6 \text{ мкм}$ (*б*), $15,6 \text{ мкм}$ (*г*).

Также был облучен образец, в котором танталовая фольга толщиной 100 мкм была диффузионным способом прикреплена на медный диск. Но фольга отслоилась от медного диска практически сразу после начала облучения образца протонным пучком током 150 мкА , нагрелась до температуры более 2000 °C и растрескалась (все облучение продолжалось 6 мин). На Рис. 43 представлены фотографии образца после облучения.

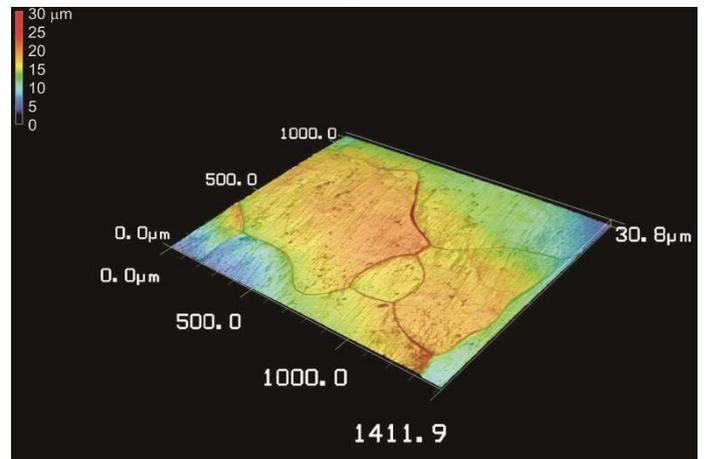
*a**б**в**г*

Рис. 43. Фотографии образца после облучения, сделанные фотокамерой (*a*), фотокамерой через оптический микроскоп (*б*) и на лазерном микроскопе (*в*). На *г* представлены результаты обработки сигнала лазерного микроскопа. Размер кадра $1411,9 \times 1000$ мкм² (*в* и *г*); высота 30,8 мкм (*г*).

§ 3.4. Экспериментальные результаты. Серия II

Были исследованы 9 образцов, из них 4 медных (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. Для охлаждения образцов использовали новую охлаждающую поверхность (Рис. 37б), обеспечившую лучший теплосъем по сравнению с той, что была использована в первой серии экспериментов. Ко второй серии экспериментов улучшили качество снимков ССD камеры с дистанционным микроскопом за счет настройки камеры – уменьшения диафрагмы отверстия, увеличения выдержки до 7 с и уменьшения светочувствительности матрицы, за счёт переноса подсветки образцов галогенной лампой с дополнительного окна в окно наблюдения и за счёт подавления вибраций стола, на котором закреплена камера. Также во второй серии экспериментов инфракрасной камерой FLIR T650SC измеряли температурное поле поверхности образца.

Образец № 1

Образец из мелкозернистой меди чистотой 99,996 % (OFC-1 JIS H3150 C1011, Copper Products Co., Ltd, Япония) облучили протонами до флюенса $5,6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Ток протонного пучка был равен $524 \pm 28 \text{ мкА}$, температура поверхности образца, измеряемая пирометром, – $82 \pm 16 \text{ }^\circ\text{C}$, максимальная температура, измеряемая инфракрасной камерой, – $152 \text{ }^\circ\text{C}$. Динамика блистерообразования представлена на Рис. 44. Видно, что сразу после начала облучения произошло формирование рельефа поверхности, связанное с прогревом металла в вакууме (Рис. 44б).

Блистеры на поверхности образца стали появляться с флюенса $0,45 \cdot 10^{19}$ см⁻² (Рис. 44*б*) и далее при увеличении флюенса их количество росло (Рис. 44*з-е*).

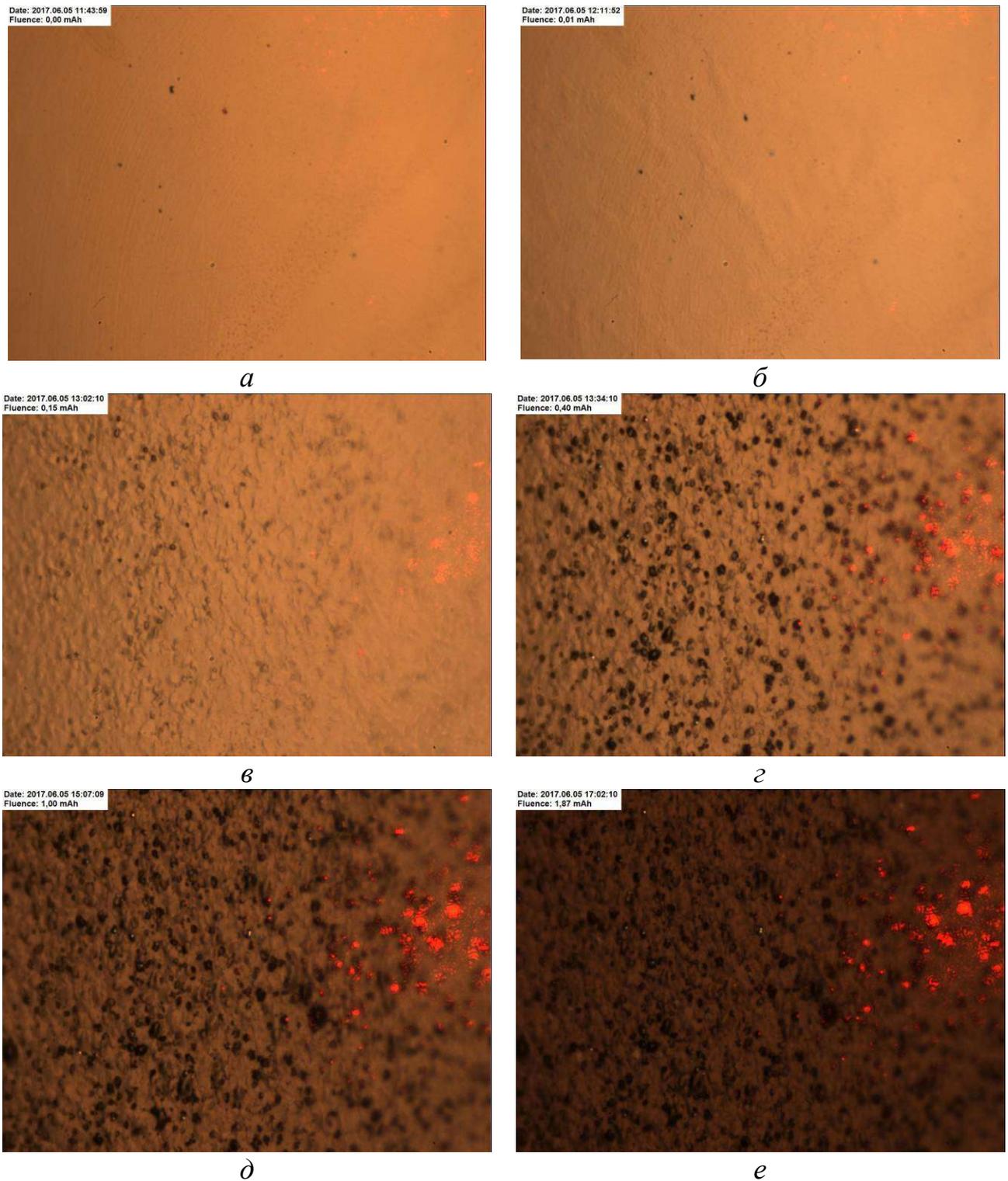


Рис. 44. Фотографии поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,996 % при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0 (*а*), 0,01 (*б*), 0,15 (*в*), 0,40 (*г*), 1,00 (*д*), 1,87 мА ч (*е*). Размер кадра 9×4 мм².

Для определения характерного размера блистеров была написана программа для поиска блистеров на изображении и определении их размеров. Для удобства отображения блистера они заключены в прямоугольники. Результат обработки изображения, представленного на Рис. 41е, и гистограмма распределения размера стороны прямоугольника, который соответствует размеру блистера, представлены на Рис. 45. Размер блистеров составил 40 ± 20 мкм.

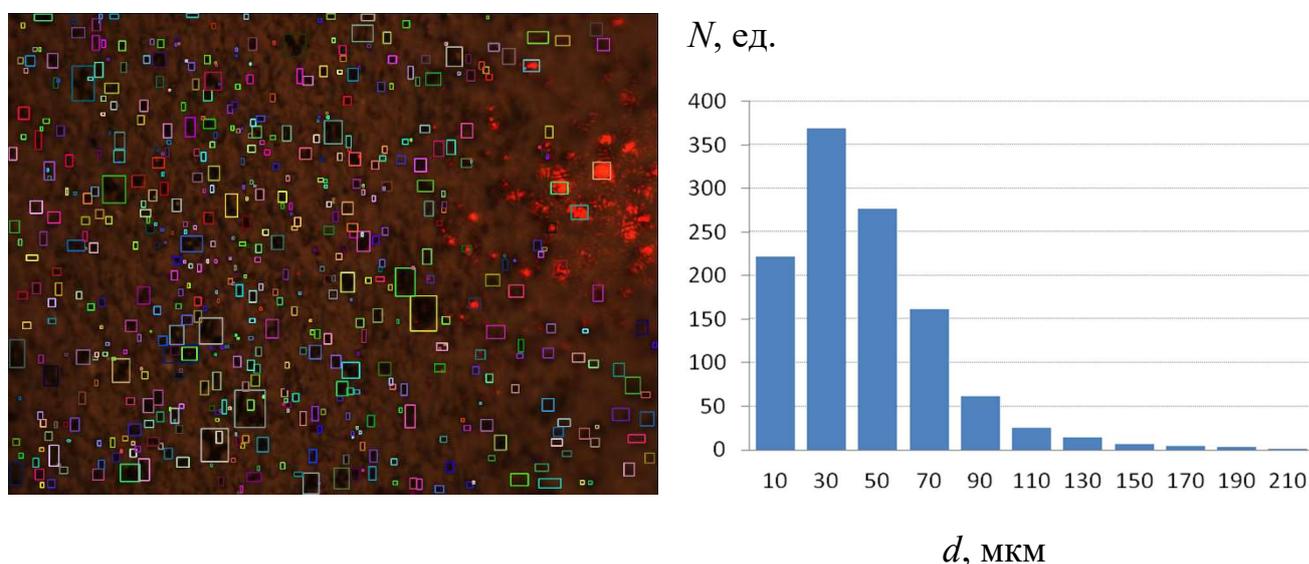


Рис. 45. Результат обработки снимка и гистограмма распределения размеров блистеров на поверхности мелкозернистой меди чистотой 99,9996 %. Размер кадра 9×4 мм².

Образцы № 2 и № 3

Образцы из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Co. (Япония) облучили протонами до флюенса $5,6 \cdot 10^{19}$ см⁻². Ток протонного пучка был равен 526 ± 31 мкА, температура поверхности образца, измеряемая пирометром, – 83 ± 8 °С, максимальная температура, измеряемая инфракрасной камерой, – 161 °С.

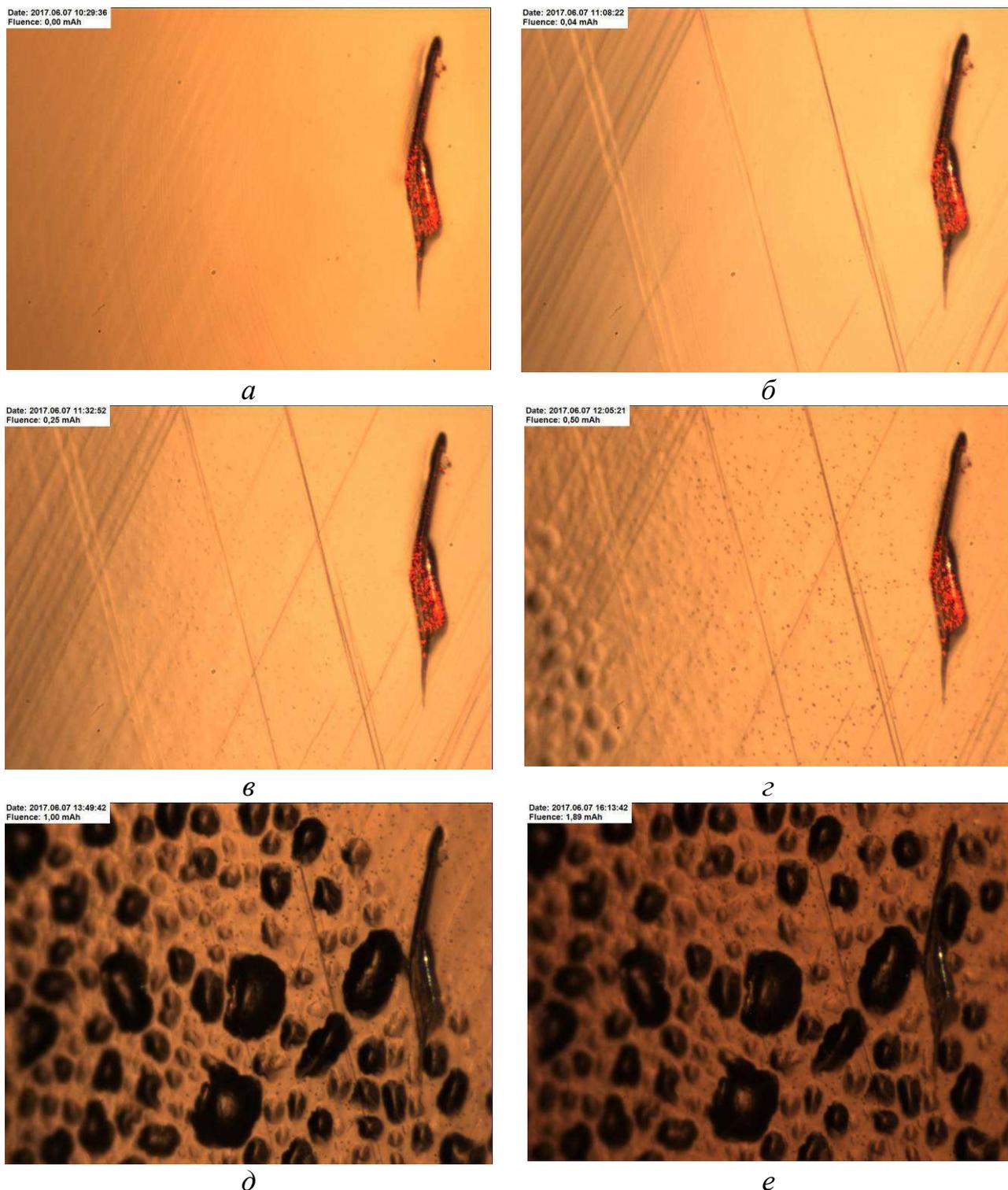


Рис. 46. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % (образец № 2) при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0 (*a*), 0,04 (*б*), 0,25 (*в*), 0,50 (*г*), 1,00 (*д*), 1,89 мА ч (*е*). Размер кадра $9 \times 4 \text{ мм}^2$.

На Рис. 46 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. 46б), затем появились маленькие блистеры (Рис. 46в), а при флюенсе $1,5 \cdot 10^{19}$ см⁻² с левого нижнего угла стали появляться большие (Рис. 46г), которые со временем заполнили всю видимую область. Распространение блистеров слева направо обусловлено тем, что центр пучка протонов в данном случае находится в левом углу.

Во время проведения облучения изображения CCD-камеры сохраняются каждые тридцать секунд. В частности, в данном случае, длительность облучения образца составила 4 ч 38 мин и было сохранено 457 снимков. На Рис. 47 представлена зависимость изменения яркости снимка относительно яркости первого снимка B от интеграла тока Φ . Здесь величина B определяется как

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

где $B_{j,i}$ – 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 $N = 1447680$). 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 мА ч (флюенс $1,5 \cdot 10^{19}$ см⁻²) снова отчетливое потемнение, что объясняется появлением блистеров.

B , отн. ед.

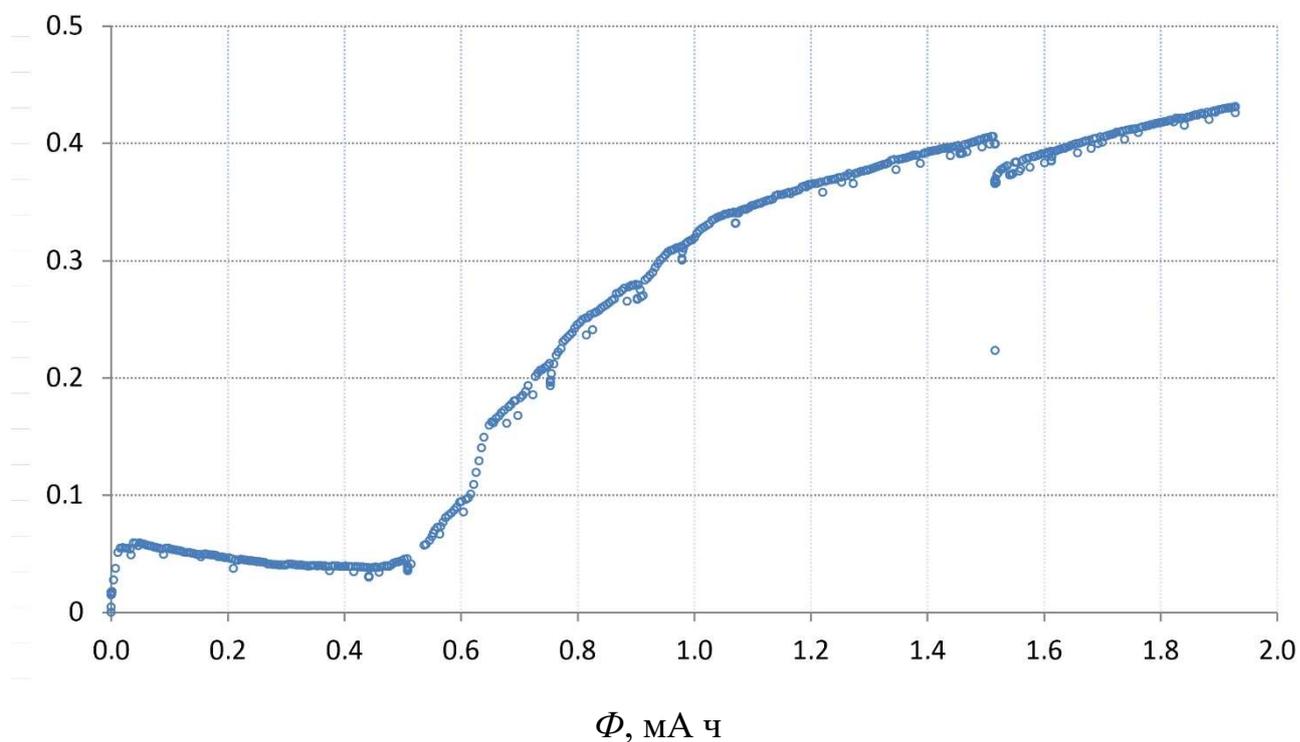


Рис. 47. Зависимость изменения яркости снимка B от набранного интеграла тока протонов Φ .

Т.о., из Рис. 46 и Рис. 47 можно заключить, что блистеры на поверхности крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % 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 %.

Размер блистеров определили по процедуре, реализованной на образце № 1 (см. Рис. 45). На Рис. 48 представлена гистограмма распределения размера блистеров. Размер составил 170 ± 50 мкм.

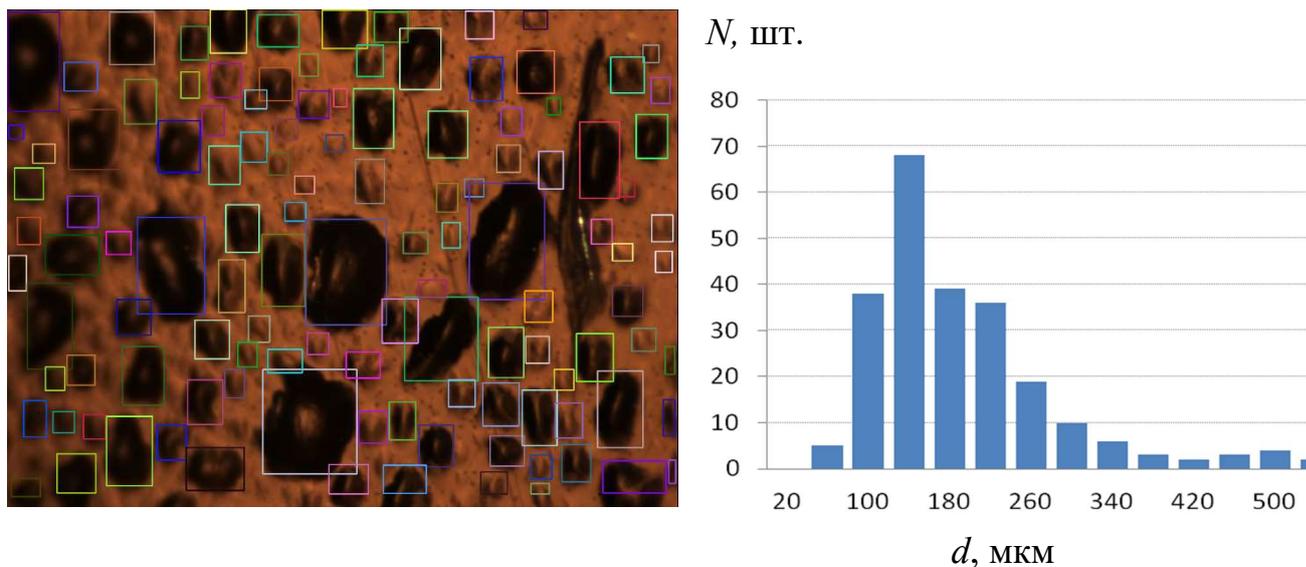


Рис. 48. Результат обработки снимка и гистограмма распределения размеров блистеров на поверхности крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % (образец № 2). Размер кадра $9 \times 4 \text{ мм}^2$.

На Рис. 49 представлены фотографии части поверхности образца, сделанные на электронном микроскопе со сфокусированным ионным пучком FIB-SEM Helios G3 UC. На Рис. 49а видно, что поверхность покрыта блистерами с характерным размером 100 мкм. Один из таких блистеров был разрезан ионным пучком, его изображение представлено на Рис. 49б. Видно, что внутри металла на глубине 10-20 мкм образовалась полость. Поскольку длина пробега протонов с энергией 2 МэВ в меди равна 19 мкм [110], 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. 49в. Этот блистер также был разрезан ионным пучком и его изображение представлено на Рис. 49г. 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, размещённой внутри высоковольтного терминала при взаимодействии пучка ионов водорода с обдирочным газом, аргоном [126, 127]. Хотя поток положительных ионов аргона

мал, из-за меньшей энергии и большей массы глубина проникновения ионов аргона существенно меньше и образование блистеров может происходить при существенно меньшем флюенсе. На Рис. 46в можно отчетливо увидеть наличие на поверхности блистеров малого размера, которые появились до начала появления блистеров большего размера, обусловленных облучением протонов.

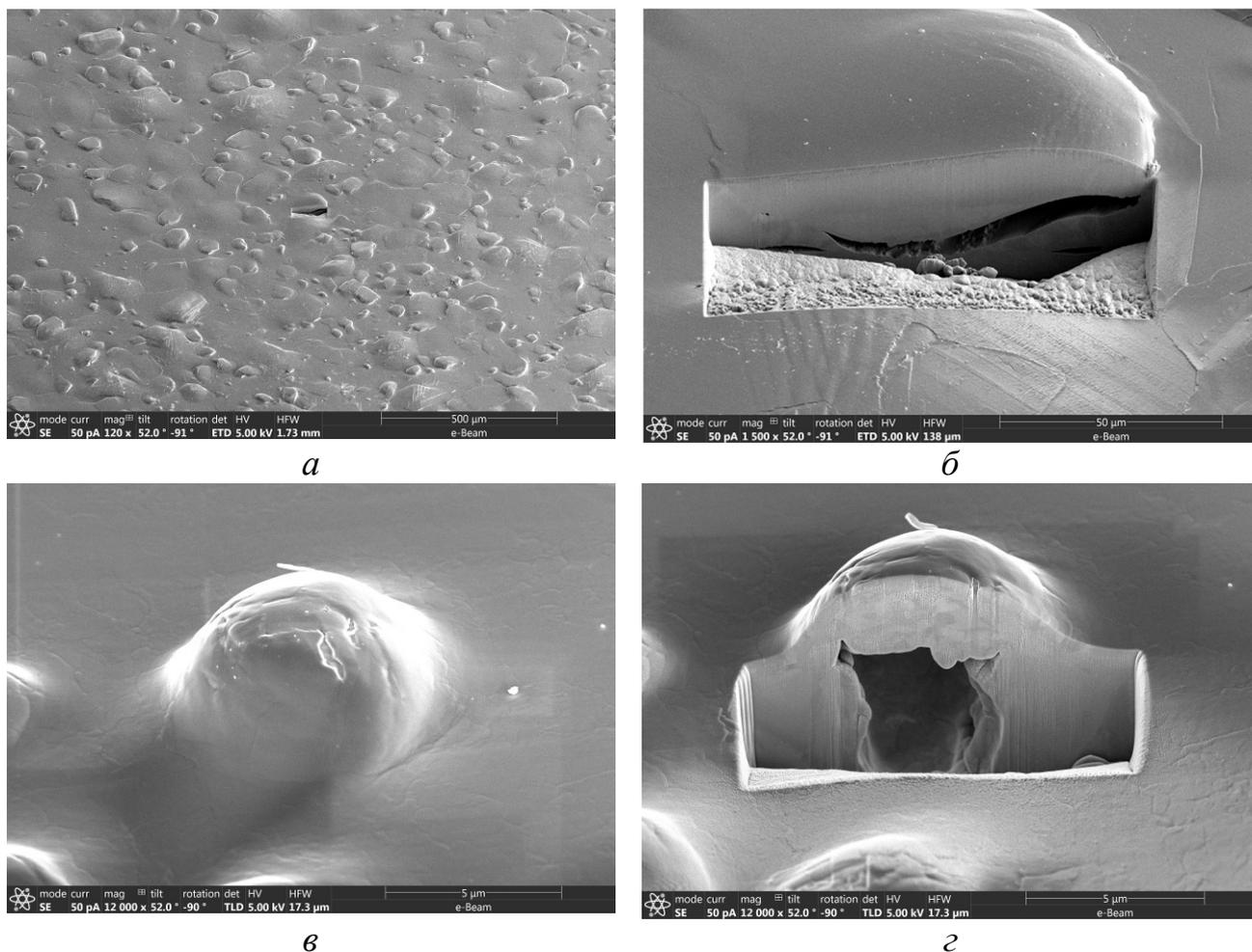


Рис. 49. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996 %, сделанные на электронном микроскопе со сфокусированным ионным пучком FIB-SEM Helios G3 UC. На а, б и г виден блистер, специально разрезанный ионным пучком.

Д.ф.-м.н. С.А. Громиловым, заведующим лабораторией Института неорганической химии СО РАН, проведено рентгенодифрактометрическое исследование облученной поверхности медных образцов на дифрактометре SHIMADZU XRD-7000 (CuK α -излучение, Ni-фильтр, схема Брэгга–Брентано) при

комнатной температуре. В качестве внешнего эталона использованы LaB_6 (SRM-660a) и Si (SRM-640c). Полученные дифрактограммы проиндцированы с использованием данных для гранцентрированной кубической структуры (ГЦК) меди [128]: $a_{\text{эталон}} = 3,6149 \text{ \AA}$. Полнопрофильное уточнение выполнено по программе PCW [129]. Параметры ГЦК ячейки рассчитывали, исходя из положения отражения $2\theta_{220}$, на котором дублет $\text{CuK}\alpha_{1,2}$ достаточно хорошо разделен, и при вычислениях межплоскостных расстояний d_{220} можно использовать длину волны $\lambda_{\text{CuK}\alpha_1} = 1,5406 \text{ \AA}$. 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/I_0 отражений (111) и (200). Сравнение дифрактограмм образцов показывает, что облучение протонами приводит к увеличению полуширины линии (200) от $0,10 \text{ } 2\theta$ до $0,22 \text{ } 2\theta$, 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 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.

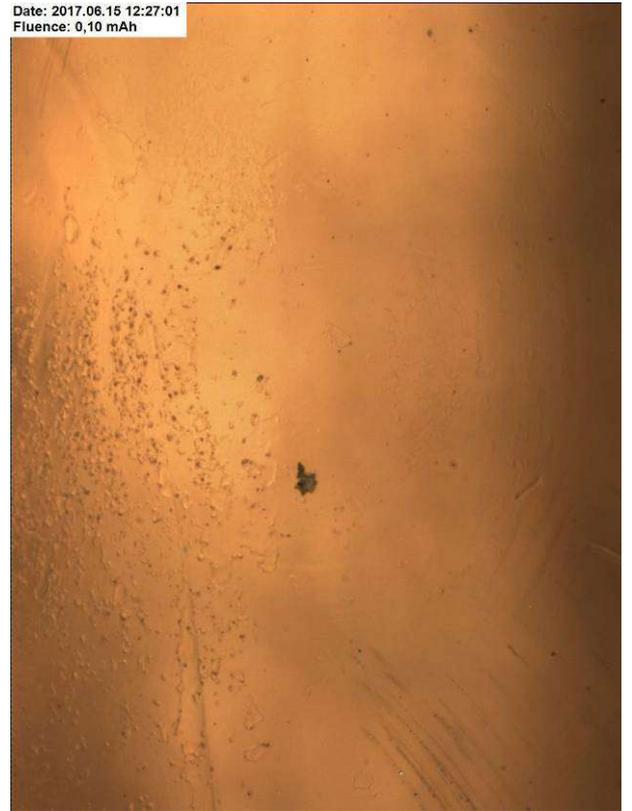
Динамика блистерообразования на образце № 3 представлена на Рис. 50. В данном эксперименте для возможности наблюдения за большей поверхностью образца увеличение удаленного микроскопа было уменьшено в 2 раза путём убирания конвертера двукратного увеличения (CF-2 objective). Также CCD-камера

была развернута на 90° относительно оптической оси. Порог образования блистеров составил значение $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, как и при облучении образца № 2. Следовательно, ориентация кристаллитов не влияет на порог образования блистеров.

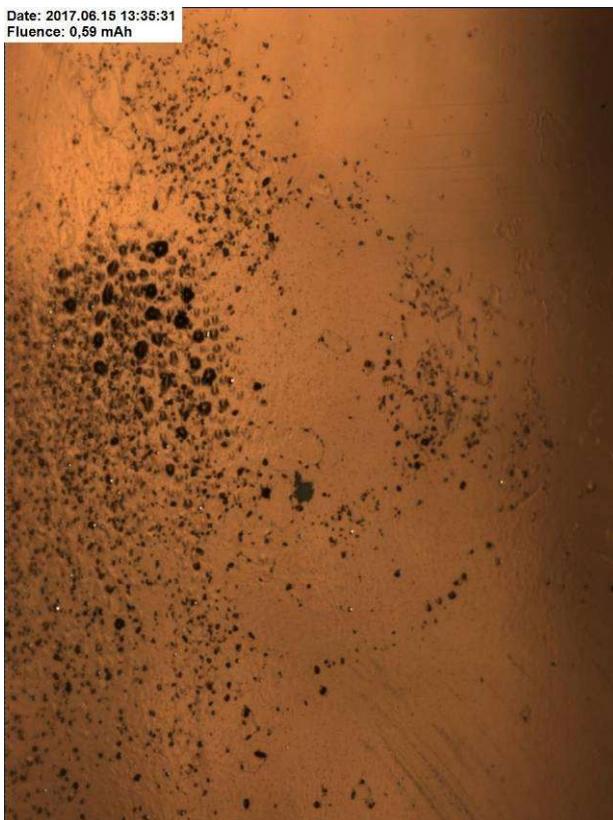
Следует обратить внимание на то, что если поверхность покрылась блистерами, то дальнейшее облучение не приводит к её модификации. Так, область, подвергаемая действию максимальной плотности протонного пучка и покрытая блистерами на Рис. 50в, практически не изменилась при увеличении флюенса в 4 раза: от $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ до $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Это может быть объяснено следующим образом. Поглощение протонов в меди на глубине 19 мкм формирует область повышенной концентрации водорода. Происходит агломерация захваченных атомов водорода, приводящая к образованию газовых пузырьков внутри металла. При достижении критического давления газа поверхностный слой деформируется – появляются блистеры в виде чешуек (Рис. 494а) или в виде пузырей (Рис. 49в), под которыми полость (Рис. 49б и Рис. 49г). 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 в процессе всплывания чешуйки или пузыря.



a



б



в



z

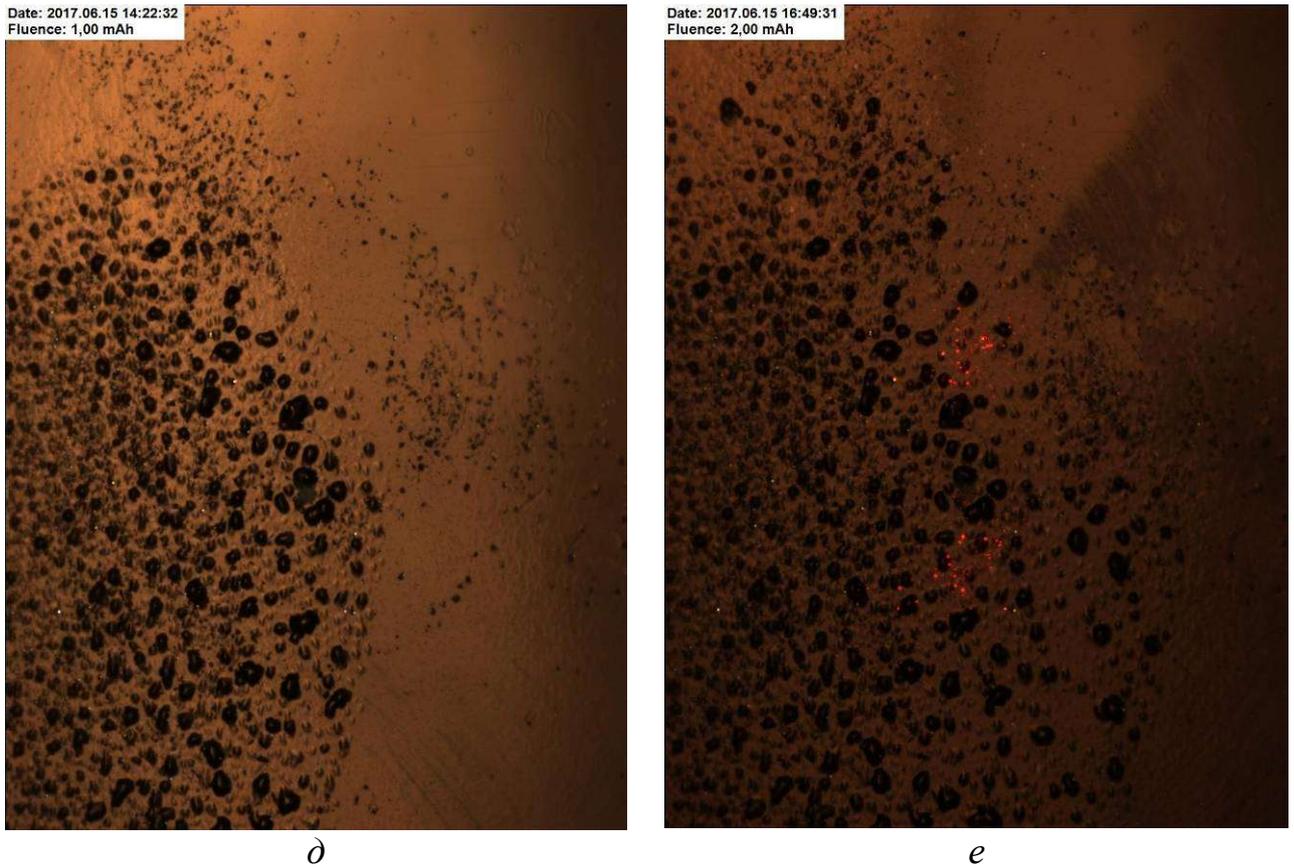


Рис. 50. Фотографии поверхности образца из крупнозернистой меди чистотой 99,99996% (образец № 3) при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0,02 (*a*), 0,10 (*b*), 0,59 (*в*), 0,70 (*г*), 1,00 (*д*), 2,00 мА ч (*e*). Размер кадра $12 \times 12 \text{ мм}^2$.

Размер блистеров определили по процедуре, реализованной на предыдущих образцах (Рис. 45 и Рис. 48). Результат обработки изображения и гистограмма распределения размера блистеров представлены на Рис. 51. Размер блистеров составил $170 \pm 50 \text{ мкм}$.

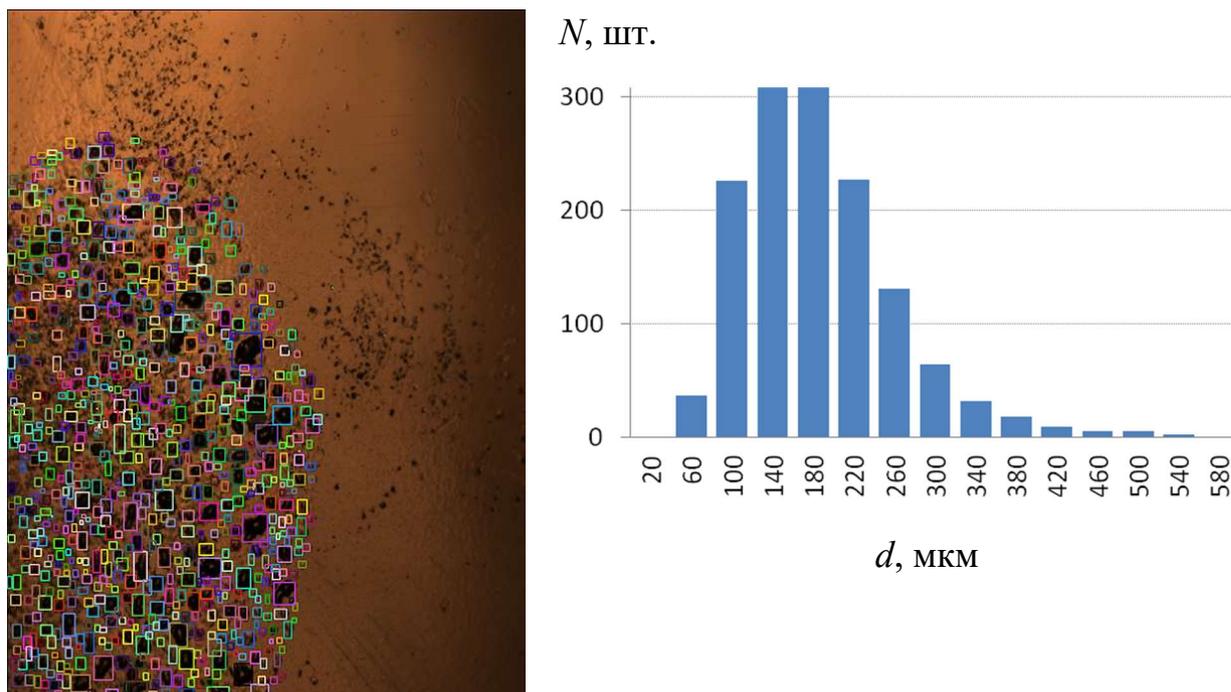


Рис. 51. Результат обработки снимка и гистограмма распределения размеров блистеров на поверхности крупнозернистой меди чистотой 99,99996 % (образец № 3). Размер кадра 12×12 мм².

Т.к. в область изображения попадала большая часть облучаемой поверхности, то динамика распространения границы области, покрытой блистерами, позволила восстановить поперечный профиль пучка протонов. На Рис. 52 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 смещён 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 ± 7 мм².

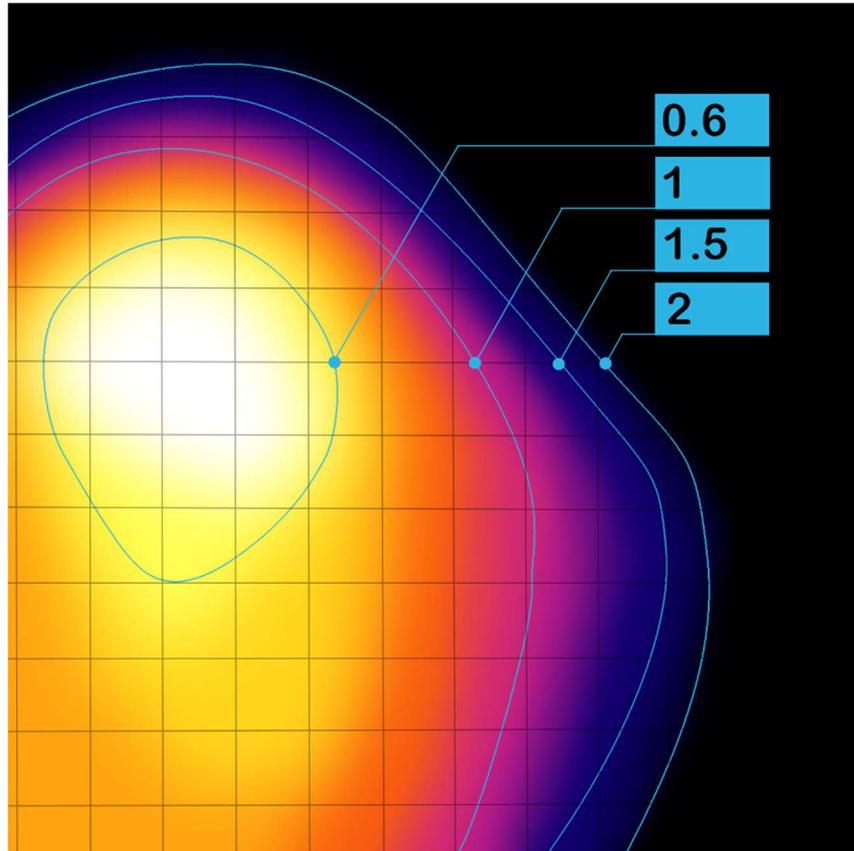


Рис. 52. Границы области, покрытой блистерами, для разных значений флюенса протонов (в ед. мА·ч). Шаг сетки равен 1 мм.

Образец № 4

Образец из мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % производства Mitsubishi Materials Co. (Япония) облучили протонами до флюенса $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Ток протонного пучка был равен $536 \pm 34 \text{ мкА}$. На Рис. 53 приведены фотографии поверхности образца № 4, демонстрирующие динамику блистерообразования, на Рис. 54 – фотографии поверхности образца после облучения.

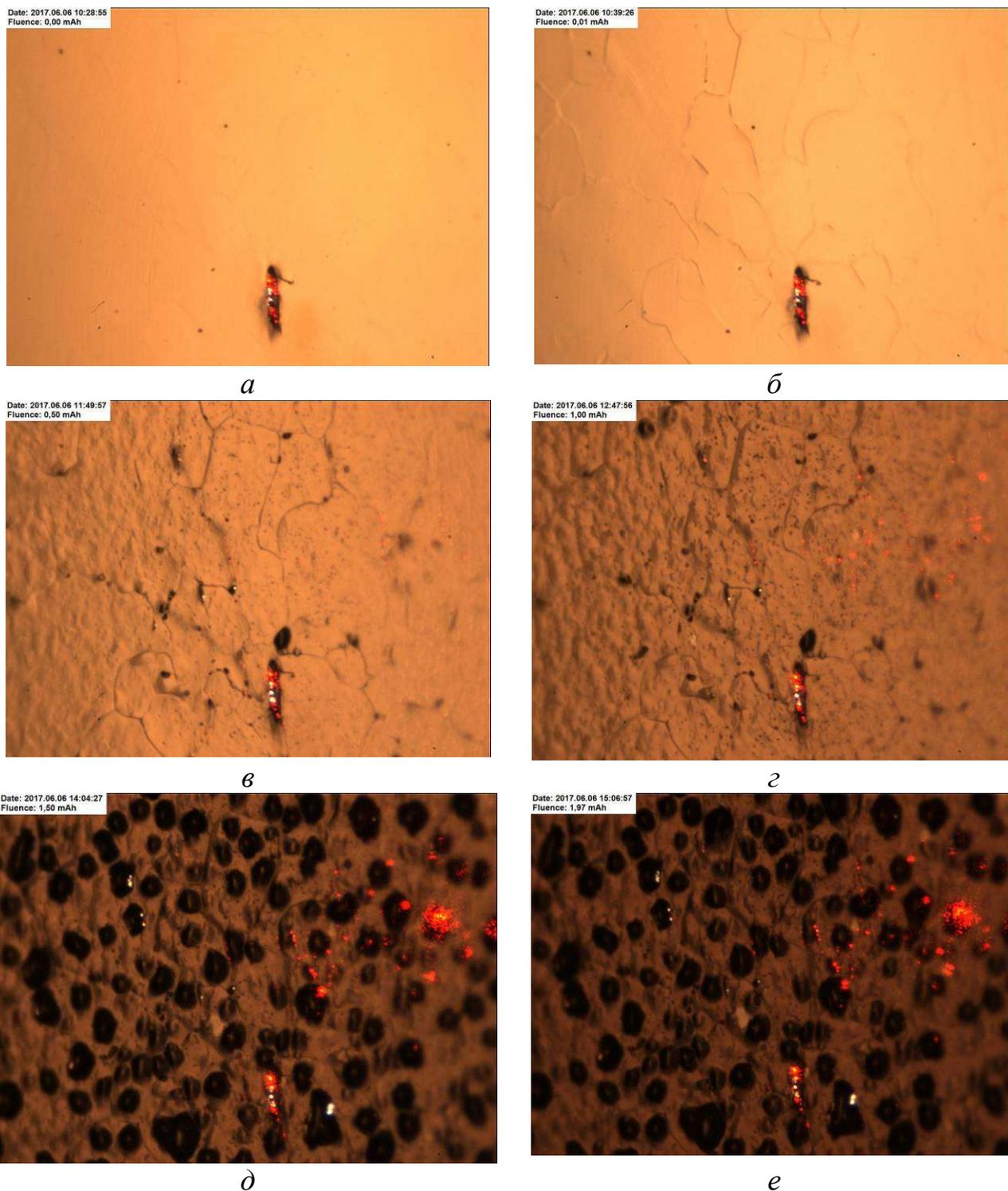


Рис. 53. Фотографии поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,99996% (образец № 4) при ее облучении протонами энергией 2 МэВ, интегралом тока 0,02 (*a*), 0,10 (*б*), 0,59 (*в*), 0,70 (*г*), 1,00 (*д*), 2,00 мА ч (*е*). Размер кадра $9 \times 4 \text{ мм}^2$.

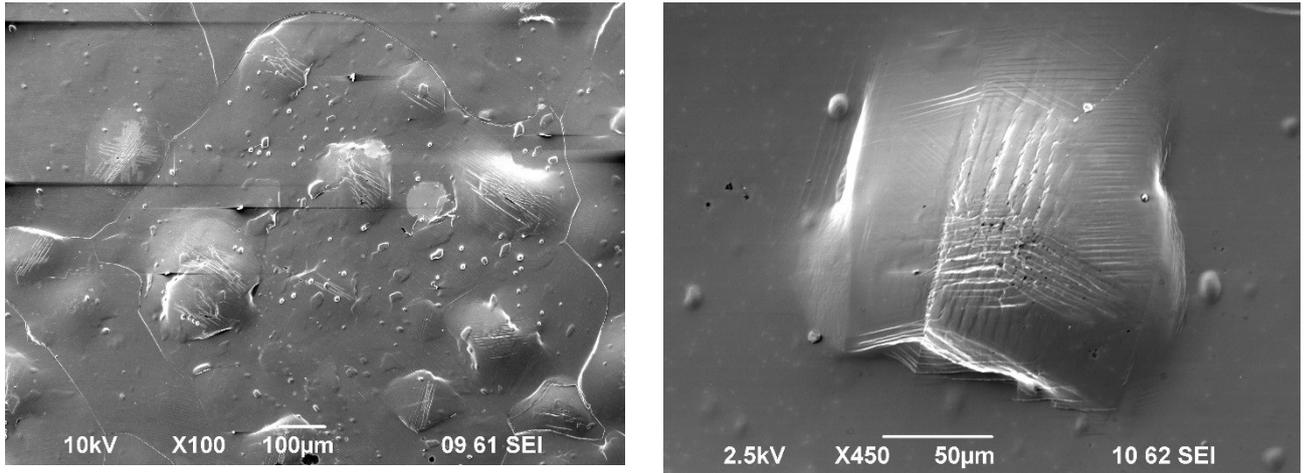


Рис. 54. Фотографии поверхности образца из мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % после облучения протонным пучком, сделанные на электронном микроскопе Jeol JCM-5700.

V , отн. ед.

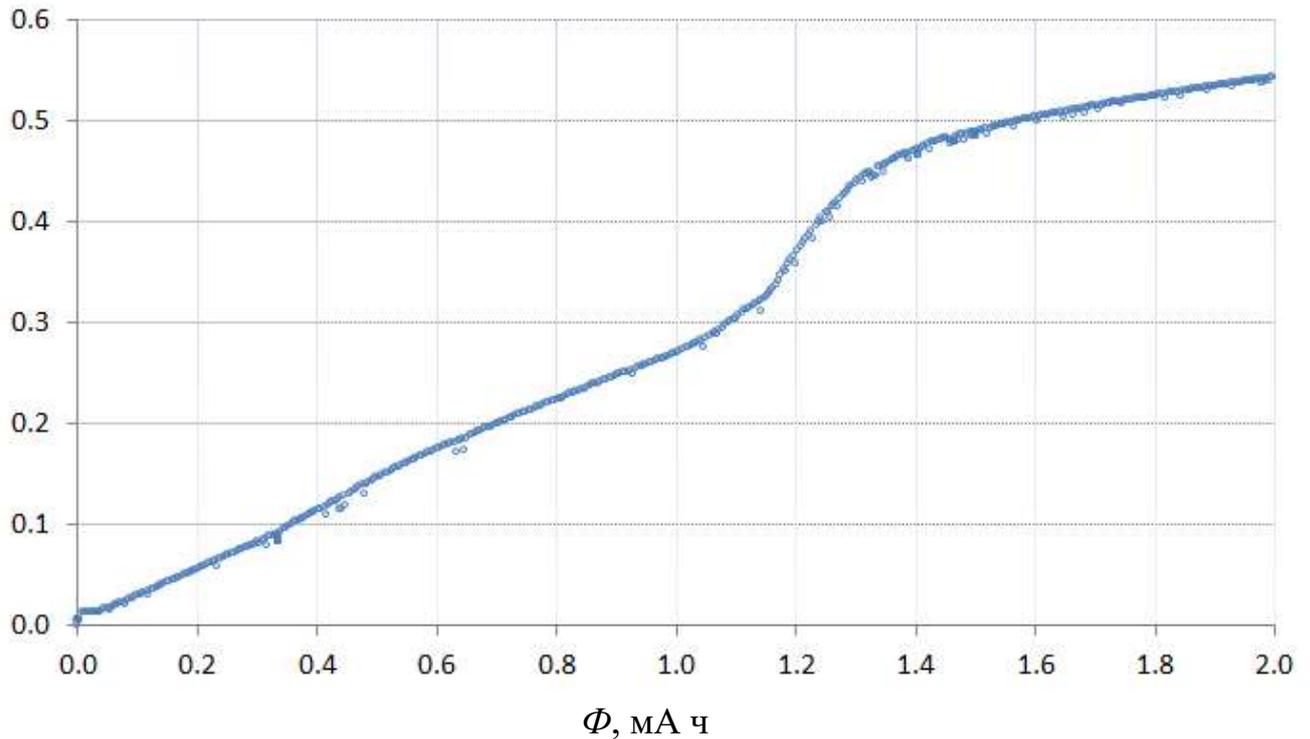


Рис. 55. Зависимость изменения яркости снимка V от набранного интеграла тока протонов Φ .

Из Рис. 53 и Рис. 55 можно заключить, что блистеры на поверхности образца мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % появляются при флюенсе протонов $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Эта величина почти в 7 раз больше величины флюенса появления

блистеров на поверхности образца № 1 – мелкозернистой меди чистотой 99,996 % и в 2 раза больше флюенса появления блистеров на поверхности образца № 2 – крупнозернистой меди чистотой 99,99996 %.

На Рис. 56 представлена гистограмма распределения размера блистеров, размер составил 155 ± 45 мкм.

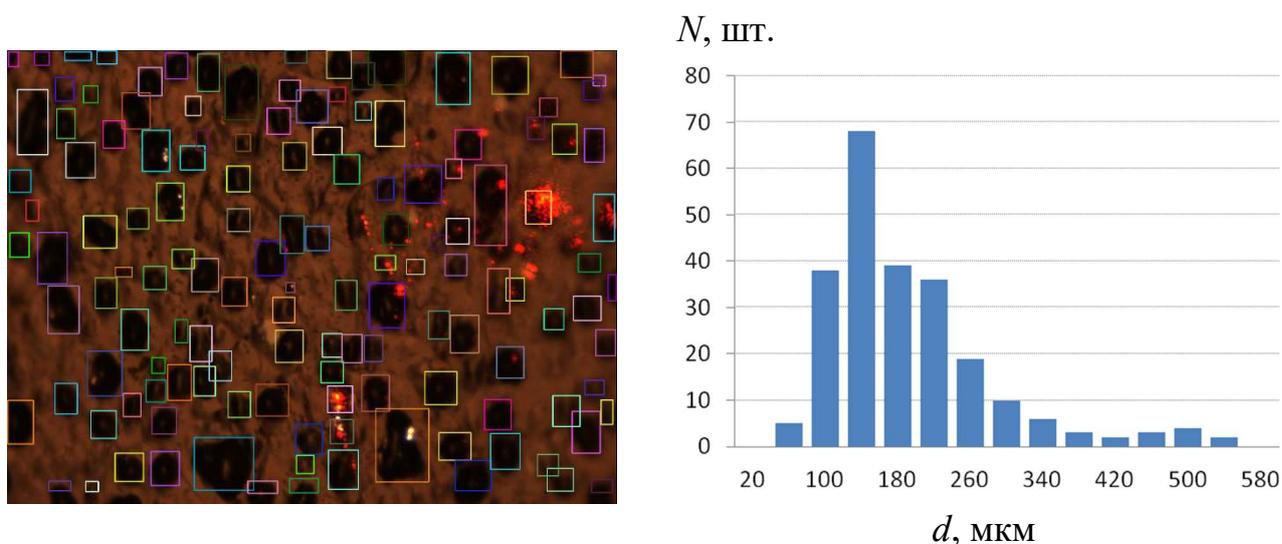


Рис. 56. Результат обработки снимка и гистограмма распределения размеров блистеров на поверхности мелкозернистой меди чистотой 99,99996 % образца № 4. Размер кадра 9×4 мм².

Образцы №№ 5 и 6

Образцы № 5 и № 6 представляют собой медные диски с танталовой фольгой, приваренной взрывом. 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 °С в течение 5 ч. На Рис. 57 представлен скриншот программы, использованной для определения толщины тантала по фотографии специально сделанного разреза. Видно, что танталовый слой однородный, его толщина равна 160 ± 5 мкм.

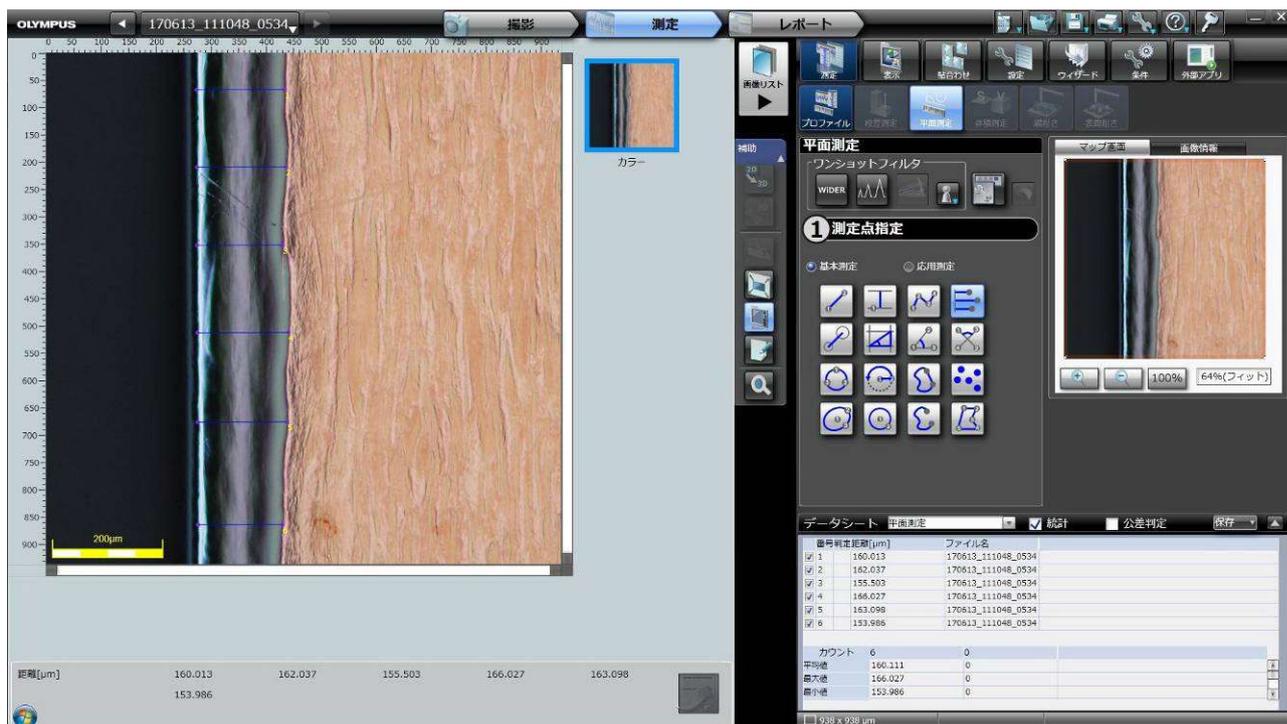


Рис. 57. Скриншот программы определения толщины танталового слоя.

Облучение протонами осуществляется со стороны тантала. Образец № 5 был облучен до флюенса $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ – никаких видимых модификаций поверхности не зарегистрировано (рис. 23). Ток протонного пучка был равен $437 \pm 96 \text{ мкА}$, температура поверхности образца, измеряемая пирометром, – $125 \pm 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ($137 \pm 9 \text{ }^\circ\text{C}$ при выборке тока $505 \pm 16 \text{ мкА}$).



Рис. 58. Фотографии поверхности тантала образца № 5 с разными флюенсами облучения 2 МэВ протонами: 0,54 мА·ч (а), 1,74 мА·ч (б). Размер кадра $9 \times 4 \text{ мм}^2$.

Образец № 6 был облучен до флюенса в 10 раз большего – до $6,7 \cdot 10^{20}$ см⁻². На Рис. 59 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 растёт с набранным флюенсом. Так, в начале облучения при флюенсе в районе 2 мА·ч температура была 167 ± 2 °С при токе 502 ± 9 мкА, а в конце, при набранном флюенсе 19-20 мА·ч – 260 ± 3 °С при токе 512 ± 8 мкА.

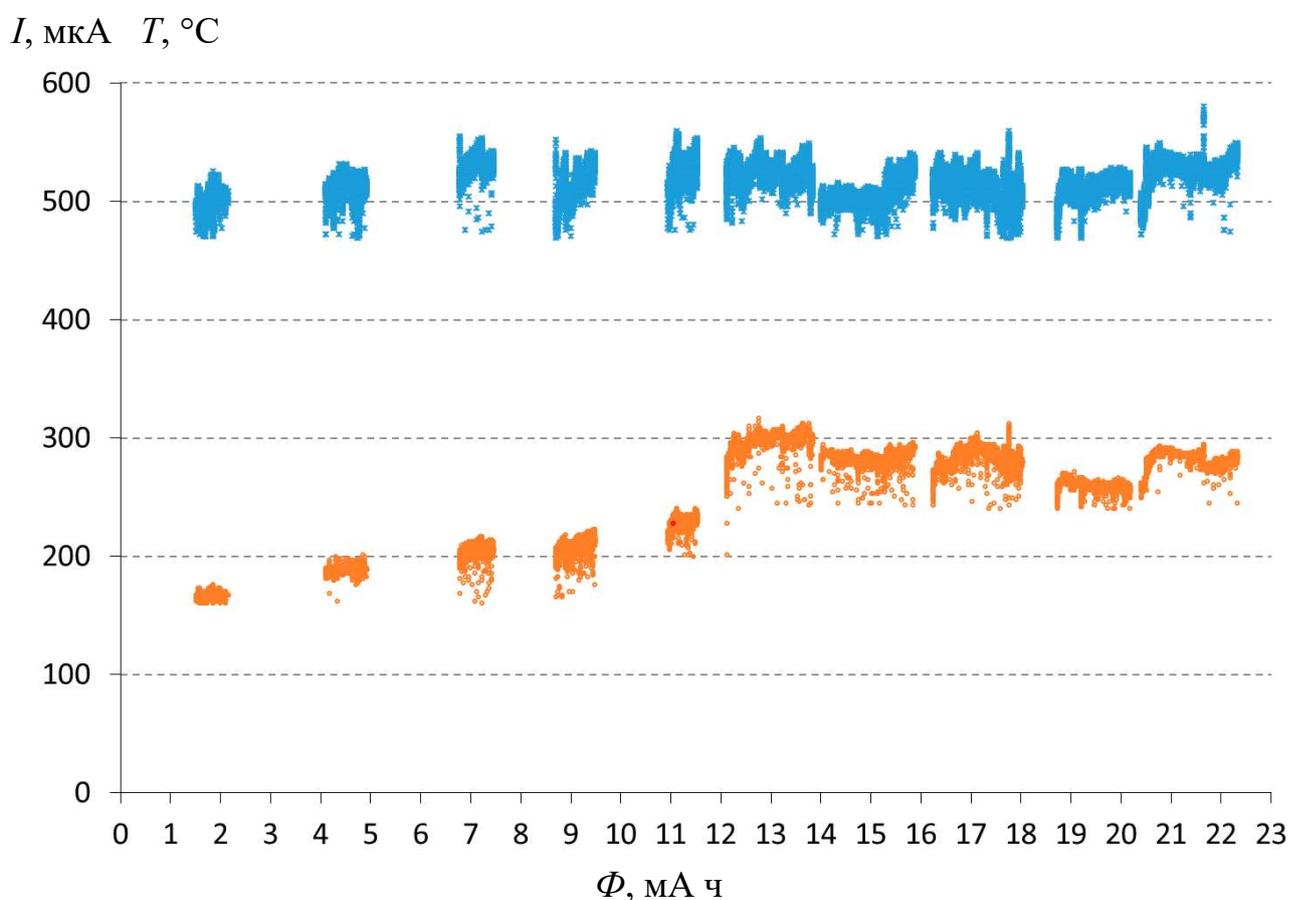


Рис. 59. Зависимость тока протонного пучка I (сверху) и показаний пирометра T (снизу; окружности) от набранного интеграла тока.

Очевидно, что измеряемый пирометром рост температуры связан не только собственно с ростом температуры поверхности образца, но и с изменением коэффициента черноты. Для исключения фактора изменения коэффициента черноты была проведена калибровка образца до и после облучения с применением терморезистора и нагрева образца горячим воздухом через каналы охлаждения. Проведенная калибровка позволила констатировать, что с увеличением набранного флюенса протонов температура поверхности образца увеличилась со $167\text{ }^{\circ}\text{C}$ не до $260\text{ }^{\circ}\text{C}$, а до $208\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Т.о., в процессе облучения тантала протонами измерено увеличение температуры поверхности образца со $167\text{ }^{\circ}\text{C}$ в начале до $208\text{ }^{\circ}\text{C}$ в конце при токе протонов $500\text{ }\mu\text{A}$. Такая величина нагрева поверхности тантала на $40\text{ }^{\circ}\text{C}$ вполне может быть объяснена уменьшением коэффициента теплопроводности слоя тантала в 2 раза за счёт внедрения водорода. При табличном значении коэффициента теплопроводности тантала 68 Вт/(м град) [96] перепад температуры на толщине $160\text{ }\mu\text{м}$ при плотности потока тепла $1,33\text{ кВт см}^{-2}$ составляет $31\text{ }^{\circ}\text{C}$ и будет на $40\text{ }^{\circ}\text{C}$ больше, если усреднённый коэффициент теплопроводности слоя уменьшится до 30 Вт/(м град) .

Видимая модификация поверхности тантала стала наблюдаться с флюенса $3,6\cdot 10^{20}\text{ см}^{-2}$, что отчетливо видно на Рис. 60. 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 $6,7\cdot 10^{20}\text{ см}^{-2}$. Поверхность, подвергнутую облучению, можно описать как рельефную с характерным размером ячеек порядка $1\text{ }\mu\text{м}$.

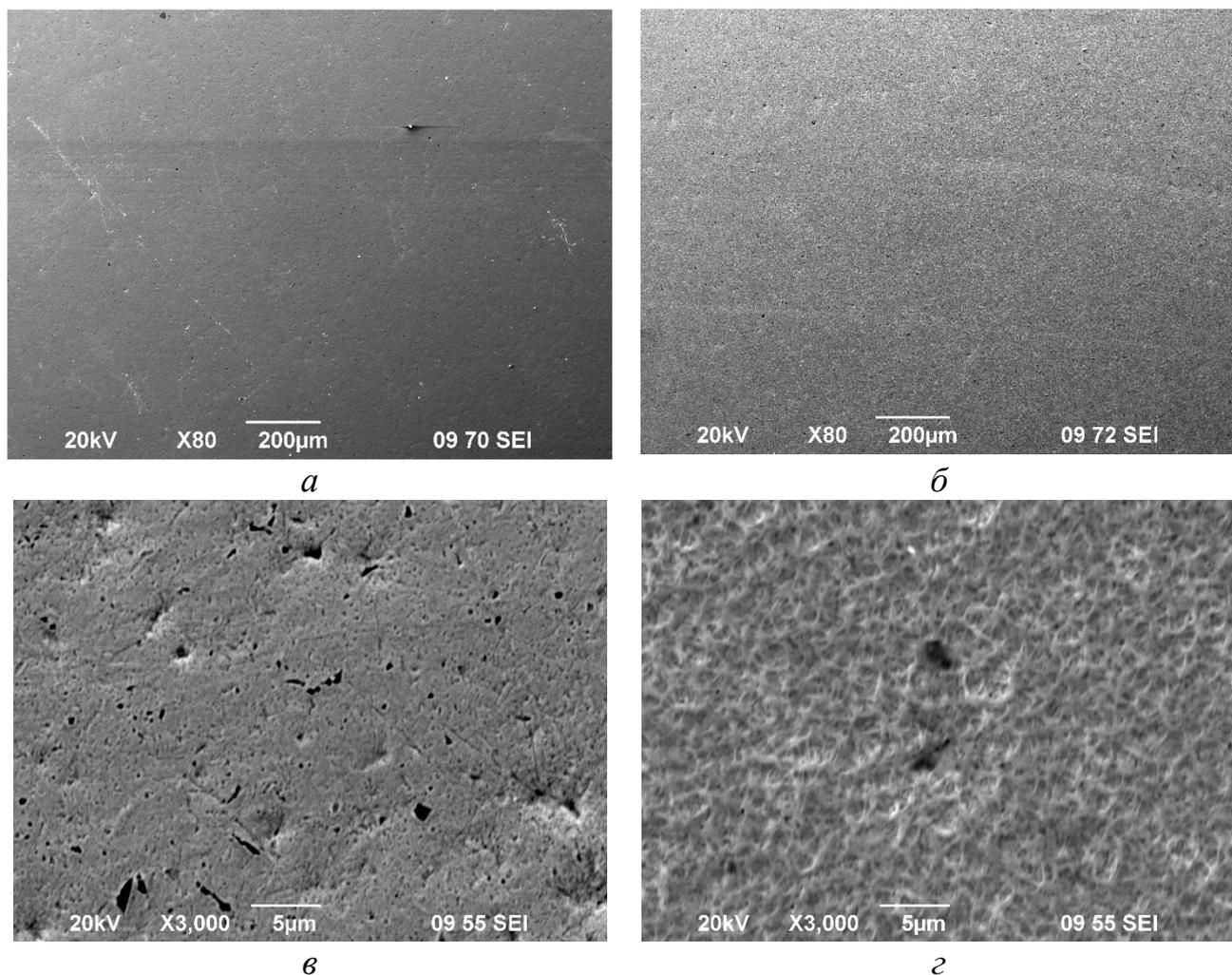


Рис. 60. Фотографии поверхности образца № 6, сделанные на электронном микроскопе Jeol JCM-5700 до облучения (*а, в*) и после облучения до флюенса $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ (*б, г*).

Оба образца № 5 и № 6, а также образец, не подвергнутый облучению, были исследованы С.А. Громиловым на дифрактометре по методике, описанной ранее. Параметры объёмно центрированной кубической (ОЦК) ячейки тантала рассчитывали исходя из положения отражения $2\theta_{321}$, на котором дублет $\text{CuK}\alpha_{1,2}$ достаточно хорошо разделён и при вычислениях межплоскостных расстояний d_{220} можно использовать длину волны $\lambda_{\text{CuK}\alpha_1} = 1,5406 \text{ \AA}$. Значения полуширины отражений (FWHM) на дифрактограммах исследованных образцов были использованы для оценки размеров областей когерентного рассеяния (ОКР). При этом уширение отражений (321) оценивали относительно эталона Si. Рентгенографические характеристики образцов сведены в Табл. 4.

Табл. 4. Рентгенографические характеристики исследованных образцов тантала

Образец	$2\theta_{321}, ^\circ$	$d_{321}, \text{Å}$	$a, \text{Å}$	$\Delta, \text{Å}$	FWHM, $^\circ 2\theta$	ОКР, нм	Состояние
Эталон тантала	121,351	0,8835	3,3058	-	-	-	Поликристалл
Необлученный	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]

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 a 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 a 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 [128 (№ 89-4073); 130] описана фаза $TaH_{0,1}$ с параметром $a = 3,327 \text{ Å}$, т.е. в пределах погрешности совпадающим с измеренным нами значением. Таким образом, в образце № 6 в кристаллическую структуру тантала внедрён 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 объёму. Выяснено, что все соединения устойчивы к нагреву – ни на одном образце не произошло отслоение или разрушение танталового слоя. Установлено, что при одинаковой мощности нагрева температура поверхности образцов разная (Табл. 5): наименьшая 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 были приведены выше.

Табл. 5. Температура образцов при облучении протонами

№	Технология	Ток, мкА	Температура, °С пирометр	Максимальная температура, °С тепловизор
5	Сварка взрывом	505 ± 16	137 ± 9	
7	Пайка	500 ± 16	247	360
8	Диффузионная сварка	505 ± 20	155	280
9	Дуговое напыление (1:1)	505 ± 15	143 ± 9	250

§ 3.5. Обобщение и обсуждение результатов

Сведём основные полученные результаты в таблицу (Табл. 6) и обобщим результаты.

Табл. 6. Характеристики образцов

№	Материал	T, °C			Порог образования блистеров 10^{19} см ⁻²	Размер блистеров мкм	Особенности
		термо-резистор	пирометр	тепловизор			
-	Cu, M0	263 ± 15			1,5		
-	Cu,	263 ± 15			1,5		
1	99,996 %	130 ± 15	82 ± 16		0,45	40 ± 20	
-	Cu,	263 ± 15			3		Трещины
2	99,99996 %, крупно-зернистая	130 ± 15	83 ± 8		1,5	160 ± 50	
3					1,5	170 ± 50	
4	Cu, 99,99996 %, мелко-зернистая	130 ± 15	84 ± 12		3	155 ± 45	
-	Ta	600			> 5,6		
5	Ta–Cu		137 ± 9	240	> 5,6		
6	(взрыв)		160-210		> 67		Рельеф с флюенса $3,6 \cdot 10^{20}$ см ⁻²
7	Ta–Cu (пайка)		247	360	> 5,6		
8	Ta–Cu (диффузионная сварка)		155	280	> 5,6		
9	Ta + Cu (сплав)		143 ± 9	250	> 5,6		

Результаты проведённых исследований по облучению 2 МэВ протонами различных образцов сформулируем следующим образом.

1. Порог образования блистеров на поверхности меди зависит от чистоты меди, в более чистой меди он больше. Максимальное значение порога составляет величину $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, минимальное в 7 раз меньше.
2. Размер блистеров на поверхности меди зависит от чистоты меди, в более чистой – блистеры больше. Размер блистеров варьируется от 40 ± 20 до 160 ± 50 мкм.
3. Зависимости порога образования блистеров от ориентации кристаллитов меди не обнаружено.
4. 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.
5. Приварка тонкой танталовой фольги к меди путём сварки взрывом, диффузионной сварки или пайки устойчива к тепловой нагрузке до 1 кВт/см^2 .
6. Тантал значительно более устойчив к образованию блистеров, чем медь. Порог образования блистеров в виде пузырей или чешуек на поверхности тантала превышает $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$. При флюенсе $3,6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ происходит модификация поверхности в виде рельефа с характерным размером ячеек 1 мкм.
7. В процессе облучения тантала измерено 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:

1. Сверхчистая медь может быть использована для изготовления подложки мишени, используемой для терапии нескольких пациентов, ориентировочно 20-ти, до появления блистеров на её поверхности.
2. Неочевидно, 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.
3. Использование тонкого слоя тантала, нанесённого 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 ведёт к уменьшению теплопроводности за счет образования полостей и внедрения водорода в кристаллическую структуру тантала и, как следствие, ведёт к заметному увеличению температуры лития, что может быть критическим даже без модификации поверхности блистерами.

Побочным результатом проведенных исследований стало измерение профиля пучка протонов с высокой степенью детализации путём определения границ области, покрытой блистерами, при разных временах облучения.

§ 3.6. Выводы

С применением CCD-камеры и удаленного микроскопа осуществлено *in-situ* наблюдение блистеринга образцов, изготовленных из меди и тантала, при их облучении пучком протонов энергией 2 МэВ, поперечным размером 1 см до флюенса $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, в одном случае в 10 раз большего. Термосопротивлением, пирометром и инфракрасной камерой измерена температура образца в процессе облучения. С применением рентгеновского дифрактометра, лазерного и электронных микроскопов проведено исследование поверхности облученных образцов.

Определено, что среди исследуемых образцов, изготовленных из меди, наибольшей стойкостью к блистерингу обладает сверхчистая (99,99996 %) мелкозернистая медь производства Mitsubishi Materials Co. (Япония). При температуре образца в районе 150 °С порог образования блистеров равен $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Если такую медь использовать для изготовления нейтроногенерирующей мишени диаметром 10 см с целью генерации нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей, то при токе протонов 10 мА мишень будет устойчива к блистерингу в течение 10 ч. Поскольку планируемое время терапии составляет 40 мин [98], то мишень может быть применена для терапии нескольких пациентов, ориентировочно 20-ти.

Крупнозернистая сверхчистая (99,99996 %) медь производства Mitsubishi Materials Co. (Япония) в 2 раза менее устойчива к блистерингу – при температуре образца в районе 150 °С порог образования блистеров равен $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Поскольку среди исследуемых образцов из крупнозернистой меди были образцы с разной ориентацией кристаллитов, то выяснено, что ориентация кристаллитов не влияет на процесс образования блистеров.

Медь марки М0 ГОСТ 859-2014 (Россия) и мелкозернистая медь марки OFC-1 JIS H3150 C1011 чистотой 99,996 % (SH Copper Products Co., Ltd, Япония) в 7 раз менее устойчива к блистерингу по сравнению со сверхчистой (99,99996 %) мелкозернистой медью – при температуре образца в районе 150 °С порог образования блистеров равен $0,45 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$.

Образцы, изготовленные четырьмя разными технологиями нанесения тантала на медь – сварка взрывом, диффузионная сварка, пайка и плазменное дуговое нанесение порошков тантала и меди, механически устойчивы к стационарной и импульсной тепловой нагрузке до 1 кВт/см².

Тантал значительно более устойчив к образованию блистеров, чем медь. Порог образования блистеров при температуре 160-200 °С превышает $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$. При флюенсе протонов $3,6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ наблюдается модификация поверхности тантала в виде рельефа (сетки) с размером ячеек порядка 1 мкм.

Установлено, что в процессе облучения тантала происходит увеличение температуры поверхности образца, что может быть связано с уменьшением теплопроводности за счет появления полостей внутри тантала 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 установлено, что сверхчистая медь может быть использована для изготовления подложки мишени, используемой для терапии нескольких пациентов, ориентировочно 20-ти. При этом неочевидно, 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. Установлено, что нанесение на медь тонкого слоя тантала увеличивает срок стойкости мишени к блистерингу ещё как минимум в 10 раз. В то же время

поглощение протонов в танталовом слое мишени ведёт к уменьшению теплопроводности за счет образования полостей и внедрения водорода в кристаллическую структуру тантала и, как следствие, может привести к заметному увеличению температуры лития, что будет критическим даже без модификации поверхности блистерами.

Результаты проведенного исследования по блистерингу доложены на 9-й Школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Киото, Япония, 2017) [24, 25], на 9-й Международной конференции по ускорителям заряженных частиц (Ванкувер, Канада, 2018) [15] и на XVIII Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии (Тайпей, Тайвань, 2018) [27]. Результаты работы опубликованы в рецензируемом научном журнале из списка ВАК [7] и в трудах конференции [15].

Глава 4

Генерация нейтронов для проведения научных исследований

Получение в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией пучка протонов с током 5 мА [131] и более, вплоть до 10 мА, а также безупречная надёжность литиевой нейтроногенерирующей мишени [88] позволили в течение 2016-2020 гг. провести научные исследования на клеточных культурах и лабораторных животных для отработки методики бор-нейтронозахватной терапии и для подтверждения качества формируемого потока нейтронов.

Совместно с Университетом Цукубы (Япония), Институтом цитологии и генетики СО РАН и Институтом молекулярной и клеточной биологии СО РАН проведены длительные планомерные исследования влияния нейтронного излучения на клеточные культуры, включая опухолевые клетки глиомы человека U251 и глиобластомы человека T98G. Установлено, что поток нейтронов эффективно снижает жизнеспособность опухолевых клеток в присутствии бора-10, сохраняя здоровые клетки без бора невредимыми [11, 132, 133]. Так, на Рис. 61 представлена зависимость выживаемости клеток U251MG без бора и с бором от флюенса нейтронов. Видно, что клетки с бором с концентрацией 40 ppm, рекомендованной для проведения БНЗТ, эффективно убиваются формируемым потоком нейтронов, в то время как клетки без бора практически остаются невредимыми. Этот означает, что основной вклад в поглощённую дозу даёт

«борная» доза как результат поглощения нейтрона бором. Неселективные дозы, обусловленные упругим рассеянием быстрых нейтронов, поглощением тепловых нейтронов и γ -квантами, вносят малый вклад в поглощенную дозу. Следовательно, формируемый поток нейтронов удовлетворяет требования БНЗТ: сопутствующие потоки быстрых нейтронов, медленных нейтронов и γ -квантов приемлемо малы.

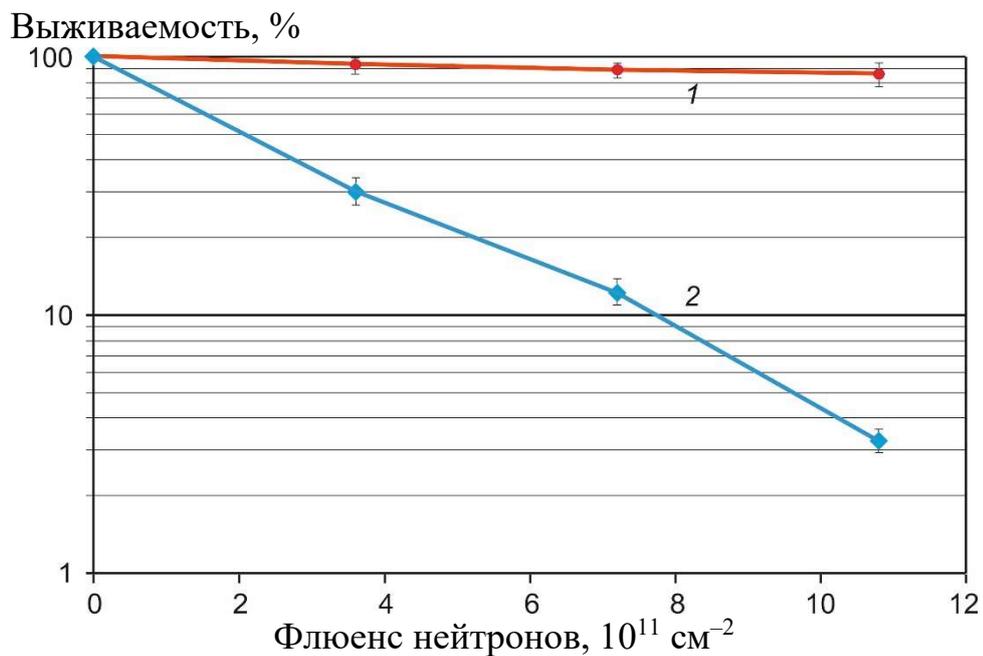


Рис. 61. Зависимость выживаемости клеток U251MG без бора (1) и с бором концентрацией 40 ppm (2) от флюенса нейтронов

Совместно с Институтом цитологии и генетики СО РАН в клиническом эксперименте *in vivo* проанализировано действие БНЗТ на рост онкологической опухоли у животных, определено значение толерантной дозы и осуществлено лечение мышей с привитой глиобластомой человека [134, 135]. Так, в одном из экспериментов использовали 3 группы мышей SCID с ортотопической трансплантацией клеток глиобластомы человека U87MG. Первую группу животных через 4 часа после инъекции борфенилаланина наркотизировали и помещали в термостабильный контейнер под пучок нейтронов на 60 мин. Второй группе животных делали инъекцию борфенилаланина, но не облучали. В качестве интактного контроля использовали животных, у которых опухоль не подвергалась

какому-либо воздействию. Всем животным внутричерепную трансплантацию клеток U87MG проводили в один день – за 32 дня до облучения. В день облучения у всех животных на сверхвысокопольном томографе BioSpec 117/16 USR (Bruker, Германия) были измерены объёмы опухолей, и экспериментальные группы были составлены таким образом, чтобы средние значения достоверно не отличались; средние значения объёмов опухоли составили величину 25 ± 7 мкл. Результаты проведённого эксперимента представлены на Рис. 62. Как видно, все мыши, не подвергнутые облучению, умерли достаточно скоро. Из тех пяти мышей, что были подвергнуты облучению, трое выздоровели. У них на четвертый день после облучения снизился объём опухоли, а на седьмой день опухоль не обнаруживалась. Эти мыши были усыплены на 92 день после трансплантации опухоли без признаков заболеваний. Те две мыши, что были облучены, но не выздоровели, имели в группе наибольшие объёмы опухоли.

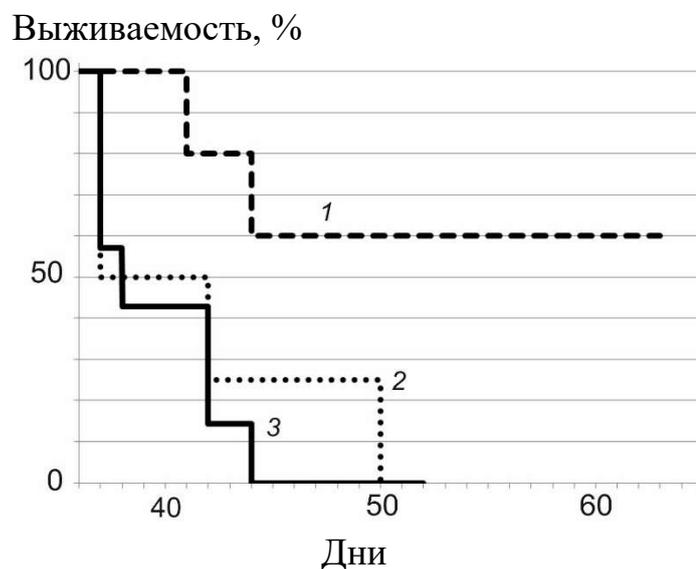


Рис. 62. График Каплана–Мейера: 1 – группа облучённых мышей, 2 – группа мышей с введенным борфенилаланином, но не облучённая, 3 – интактный контроль.

Совместно с Новосибирским государственным университетом, Институтом цитологии и генетики СО РАН и Университетом Цукубы (Япония) продемонстрировано, что липосомальный боркапнат по сравнению с

борфинилаланином или боркаптатам, приводит к лучшим результатам в подавлении скорости роста клеток глиобластомы человека U87, привитых в бедра лабораторных мышей линии SCID [136].

При проведении данных *in vitro* и *in vivo* исследований обеспечивали контроль плотности потока нейтронов, применяя активационные фольги из набора SWX-1552 (Shieldwerx, США) и детектор нейтронов с литийсодержащим сцинтиллятором GS20 (The Saint-Gobain Crystals, США), обеспечивали контроль дозы излучения, применяя дозиметр γ -излучения ДБГ-С11Д и устройство детектирования нейтронов УДМН-100 с блоком обработки и передачи данных БОП-1М (ООО "Доза", Россия), и обеспечивали контроль наведённой активности, применяя γ -детектор LB6500-3Н-10 (Berthold Technologies, Германия), дозиметр-радиометр ДКС-96 с блоком детектирования БДМГ-96 (ООО "Доза", Россия), NaI и ВГО γ -спектрометры, спектрометр γ -излучения СЕГ-1КП-ИФТП на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия.

Поскольку любой из экспериментов с клеточными культурами и лабораторными животными был продолжительным, как правило две недели с большим количеством материала для облучения, то был изучен процесс активации мишенного узла. Выяснено, что в мишенном узле [88], используемом для генерации нейтронов с марта 2008 г. по март 2018 г., основная активация связана с поглощением нейтронов марганцем, содержащимся в виде примеси в нержавеющей стали, используемой в конструкции мишенного узла. Как правило, через несколько минут после окончания облучения клеточных культур или лабораторных животных, когда требовалось заменить исследуемые образцы, мощность дозы в области размещения образцов была на уровне 20 мЗв/ч. На следующее утро мощность дозы уменьшалась примерно в 100 раз и значимой становилась активация меди и, в большей степени, бериллия.

Приведём основные характеристики ядер, ответственных за активацию.

Ядро марганца ^{55}Mn характеризуется высоким значением сечения радиационного захвата нейтрона: 13,3 б – теплового нейтрона, и 15 б – резонансный

интеграл активации $I = \int_{0.5 \text{ eV}}^{2 \text{ MeV}} \sigma(E) \frac{dE}{E}$. Наиболее сильный резонанс приходится на область эпитеплогового диапазона энергий: 55 б при 340 эВ [137]. Образующийся изотоп ^{56}Mn в результате β^- -распада превращается в стабильный изотоп железа ^{56}Fe с испусканием γ -квантов с энергией 0,847, 1,811 и 2,110 МэВ. Период полураспада равен 2,576 ч [96].

Изотоп меди ^{63}Cu характеризуется сечением поглощения теплового нейтрона 4,47 б, резонансный интеграл активации равен 3 б. Образующийся изотоп ^{64}Cu превращается в стабильное ядро в результате одного из трёх видов β -распада: β^- , β^+ или электронный захват. Период полураспада равен 12,8 ч [96]. В спектре излучения есть аннигиляционные γ -кванты с энергией 0,511 МэВ и γ -кванты с энергией 1,34 МэВ.

С каждым нейтроном связано образование ядра ^7Be , превращающегося с периодом полураспада 53,3 сут. в стабильное ядро ^7Li . В 10,3 % случаев распад сопровождается испусканием фотона с энергией 478 кэВ [138].

Для уменьшения дозы, получаемой персоналом при смене образцов для исследований или при снятии мишени, предложено исключить использование нержавеющей стали в конструкции мишенного узла, что и было реализовано. Новый мишенный узел отличается отсутствием деталей из нержавеющей стали – вакуумная камера сделана из алюминия. Медная подложка со спиралевидными каналами охлаждения, на которую напыляется тонкий слой лития, осталась прежней. Использование новой мишени позволило снизить дозу после окончания генерации в 20 раз: с 20 до 1 мЗв/ч. На следующий день после генерации доза в месте размещения образцов оставалась такой же, как и раньше, поскольку определялась неизбежно образующимся и накапливающимся радиоактивным изотопом ^7Be . При характерном флюенсе одноразового облучения в 2 мА·ч прирост дозы имел величину около 200 мкЗв/ч.

Таким образом, за счёт отказа от применения нержавеющей стали и использования меди в ограниченном количестве (только эффективно охлаждаемая подложка мишени, на которую напылён тонкий слой лития) практически исключена активация мишенного узла, за исключением неизбежно образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7.

На ускорительном источнике нейтронов также проведены исследования по отработке новой методики измерения поглощённой дозы при проведении БНЗТ, защищенной патентом [139]. Суть предложения в том, что препарат адресной доставки бора содержит стабильные ядра, которые активируются под действием нейтронов и распадаются с испусканием электрона, например, ядра золота или индия. После проведения БНЗТ с помощью γ -спектрометра, расположенного в отдельном помещении, измеряют пространственное распределение интенсивности излучения γ -квантов с энергией 411 кэВ (в случае применения золота) и с учетом полученного расчётным путем соотношения интенсивности активации золота к интенсивности поглощения нейтронов бором восстанавливают пространственное распределение поглощенной дозы. Данная методика была отработана на клеточных культурах с препаратом бор-золото, синтезированным к.х.н. С.А. Успенским из Института синтетических полимерных материалов РАН (Москва), и на лабораторных животных с препаратом бор-золото, синтезированным к.г.н. А.М. Ковальским из Московского института стали и сплавов. После облучения клеточные культуры или лабораторных животных помещали над спектрометром γ -излучения на основе полупроводникового детектора из особо чистого германия и измеряли интенсивность излучения 411 кэВ γ -квантов. На Рис. 63а приведён пример размещения мыши над спектрометром, при этом для измерения пространственного разрешения между ними находится свинцовая пластина с отверстием. При проведении исследований обратили внимание на то, что помимо излучения 411 кэВ γ -квантов отчётливо регистрируется излучение γ -квантов изотопов ^{24}Na , ^{54}Mn , ^{38}Cl и ^{42}K , образовавшихся в результате поглощения

нейтронов натрием, марганцем, хлором и калием, присутствующих в организме животного. На Рис. 63б приведён спектр излучения области здоровых клеток мышцы после облучения нейтронами, на котором видны линии излучения ^{24}Na , ^{54}Mn , ^{38}Cl и ^{42}K и аннигиляционные γ -кванты, вызванные большим разнообразием процессов.

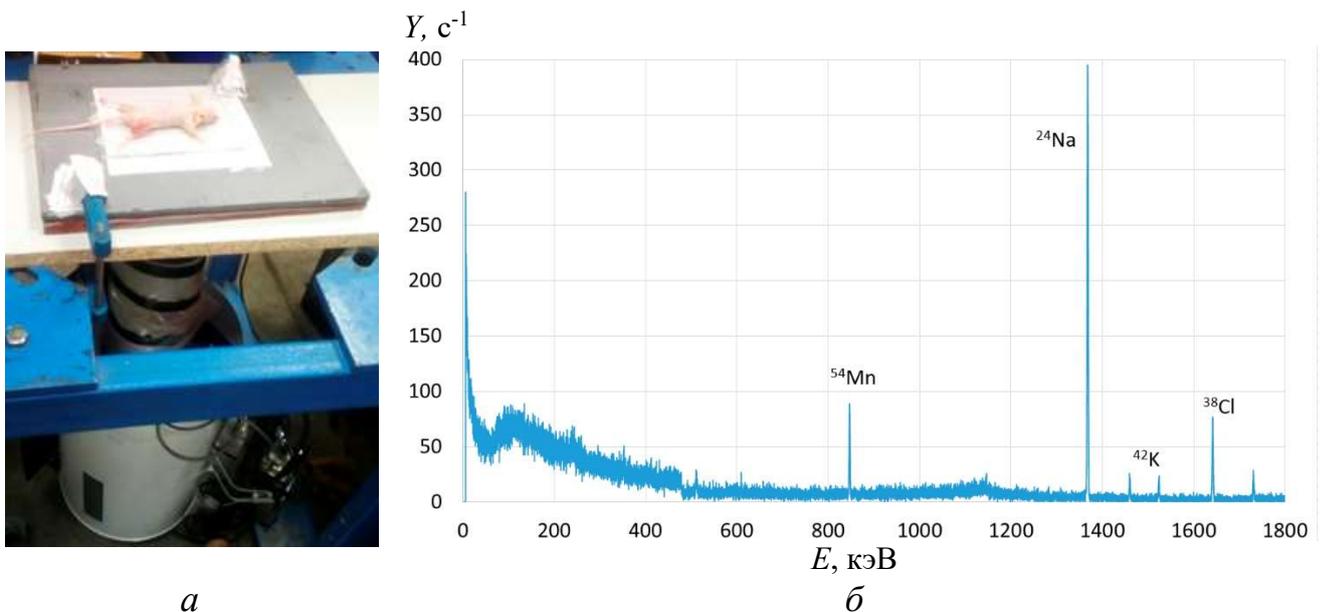


Рис. 63. Фотография стенда для измерения наведённой радиоактивности лабораторных животных после облучения (а) и характерный спектр излучения области здоровых клеток мышцы после облучения нейтронами (б).

Известно, что при проведении БНЗТ на ядерном реакторе в Институте реакторных исследований Университета Киото (Япония) применяют рентгеновскую плёнку для получения дополнительной информации о дозе облучения. Сразу после облучения, когда платформа, на которой размещён пациент и коллиматор, отъезжает от порта выхода нейтронов, рентгеновскую плёнку помещают на коллиматор со стороны реактора и засвечивают её излучением, исходящим из пациента. Нами предлагается применять другой способ получения информации о дозе после облучения, а именно измерять интенсивность излучения линий изотопов натрия, марганца, хлора и калия. Поскольку активация этих элементов, присутствующих в организме, обусловлена нейтронами, то их интенсивность пропорциональна дозе от нейтронов, получаемой здоровыми

клетками организма. Эта информация о дозе безусловно будет полезна при анализе результатов лечения пациентов. Для защиты данного изобретения получен патент на изобретение [16].

Создание надежно работающего источника нейтронов позволяет проводить исследования и в других направлениях. Так, для Международного термоядерного реактора ИТЭР, строящегося в Кадараше (Франция), измерено содержание марганца и других примесей в образцах керамики из карбида бора, изготовленных разными производителями по разным технологиям [140]. В программе развития Большого адронного коллайдера ЦЕРН (Женева, Швейцария) предусмотрено проведения испытаний на радиационную стойкость оптических кабелей на ускорительном источнике нейтронов ИЯФ СО РАН, в котором замена водорода на дейтерий в источнике ионов обеспечивает генерацию быстрых нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(d,n)$ [141].

Результаты проведенных исследований по активации материалов доложены на XIII Симпозиуме по дозиметрии нейтронов и ионов (Краков, Польша, 2017) [23] и на XIII Забабахинских научных чтениях (Снежинск, 2017) [22], по применению активационной методики – на 9-й Школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Киото, Япония, 2017) [26], по облучению клеточных культур – на XV Международном конгрессе по радиационным исследованиям (Киото, Япония, 2015) [18] и на III Научно-практической конференции "Наука. Медицина. Инновации" (Новосибирск, 2020). Для защиты предложенного способа измерения дозы получен патент на изобретение [16]. Результаты работы опубликованы в рецензируемом научном журнале из списка ВАК [11].

Заключение

Для развития методики бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей в Институте ядерной физики СО РАН предложен, создан и функционирует источник эпитепловых нейтронов на основе электростатического ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией и литиевой мишени, обеспечивающий генерацию нейтронов в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$.

Основные результаты диссертационной работы следующие:

1. Измерена мощность дозы рентгеновского и γ -излучения при поглощении 2 МэВ протонов в различных конструкционных материалах. Измерено сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,65 до 2,225 МэВ. Определено, во сколько раз применение тонкой литиевой мишени по сравнению с толстой уменьшает нежелательный для БНЗТ поток 478 кэВ фотонов из реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ без уменьшения потока нейтронов.

2. С применением CCD-камеры и удаленного микроскопа осуществлено *in-situ* наблюдение динамики образования блистеров на поверхности меди и тантала.

Установлено, что порог образования блистеров на поверхности меди зависит от чистоты меди, в более чистой меди он больше. Максимальное значение порога составляет величину $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, минимальное в 7 раз меньшее. Размер блистеров на поверхности меди зависит от чистоты меди, в более чистой блистеры больше. Размер блистеров варьируется от 40 ± 20 до 160 ± 50 мкм. Установлено, что после

появления блистеров на поверхности меди дальнейшее облучение не приводит к модификации поверхности.

Установлено, что тантал значительно более устойчив к образованию блистеров, чем медь. Порог образования блистеров в виде пузырей или чешуек на поверхности тантала превышает $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$. При флюенсе $3,6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ происходит модификация поверхности в виде рельефа с характерным размером ячеек 1 мкм.

3. Изучена активация мишенного узла и внесены изменения в его конструкцию, позволившие в 20 раз уменьшить наведенную радиоактивность до уровня радиоактивности бериллия-7, неизбежно образующегося в реакции генерации нейтронов.

4. Разработанную тонкую литиевую мишень используют для длительной стабильной генерации нейтронов с целью отработки методики БНЗТ и для ряда других приложений.

Рекомендуется продолжить дальнейшие исследования по изучению радиационного блистеринга металла при имплантации ионов, в том числе его влияния на выход нейтронов из литиевого слоя, нанесенного на металл.

Пользуясь случаем, автор выражает глубокую благодарность научному руководителю Сергею Юрьевичу Таскаеву за помощь в выборе направления данной работы, постоянную поддержку и внимание к исследованиям.

Особую признательность автор выражает коллегам по экспериментам на установке БНЗТ: Быкову Т.А., Кошкарёву А.М., Макарову А.Н., Щудло И.М., Колесникову Я.А., Соколовой Е.О., Понамарёву П.Д., Понедельченко А.В. за ценные обсуждения, помощь в проведении всех экспериментов, а также в подготовке данной работы, без которой она была бы невозможна. Автор признателен Баянову Б.Ф. за большое количество полезных обсуждений и замечаний. Автор особо признателен сотрудникам Института науки и технологий Окинавы Хигаши Я., Сузуки Ф. и Батрутдинову А. за совместную работу при изучении блистеринга и предоставленное оборудование. Автор признателен группе

Бельченко Ю.И. за полноценную поддержку работоспособности ионного источника. Автор выражает благодарность Рузайкину М.А. за оперативное и качественное изготовление необходимых изделий в цеху.

В заключение хотел бы поблагодарить всю мою большую семью и любимую жену за постоянную моральную поддержку и интерес к исследовательской работе.

Список литературы

1. Sauerwein W., Wittig A., Moss R., Nakagawa Y. (editors). Neutron Capture Therapy: Principles and Applications. – Springer, 2012. – 553 p.
2. Таскаев С.Ю., Каньгин В.В. Бор-нейтронозахватная терапия. Новосибирск: Издательство СО РАН, 2016. – 216 с.
3. 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.
4. Kreiner A. Accelerator-based BNCT // In: Neutron Capture Therapy: Principles and Applications. Eds.: Sauerwein W., Wittig A., Moss R., Nakagawa Y. Springer. – 2012. – P. 14-54.
5. <https://nucleus.iaea.org/sites/accelerators/Pages/Interactive-Map-of-Accelerators.aspx>
6. 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.
7. Badrutdinov A., Bykov T., Gromilov S., Higashi Y., Kasatov D., Kolesnikov I., Koshkarev A., Makarov A., Miyazawa T., Shchudlo I., Sokolova E., Sugawara H., Taskaev S. *In Situ* observations of blistering of a metal irradiated with 2-MeV protons // Metals. – 2017. – V. 7, iss. 12. – 558.
8. Taskaev S., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Koshkarev A., Makarov A., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E., 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 0.65 MeV to 2.225 MeV // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B. – 2021. – V. 502. – P. 85-94.
9. Касатов Д.А., Макаров А.Н., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Излучение при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в различных материалах // Ядерная физика. – 2015. – Т. 78, № 11. – С. 963-969.
 10. 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 // Applied Radiation and Isotopes. – 2015. – V. 106. – P. 38-40.
 11. Волкова О.Ю., Мечетина Л.В., Таранин А.В., Заборонок А.А., Nakai K., Лежнин С.И., Фролов С.А., Касатов Д.А., Макаров А.Н., Сорокин И.Н., Сычева Т.В., Щудло И.М., Таскаев С.Ю. Влияние нейтронного излучения на жизнеспособность опухолевых клеток, культивированных в присутствии изотопа бора ^{10}B // Вестник рентгенологии и радиологии. – 2016. – Т. 97, вып. 5. – С. 283-288.
 12. Kasatov D., Makarov A., Shchudlo I., Taskaev S. Measurement of the dose rate and the radiation spectrum of the interaction of 2 MeV proton beam with a variety of structural materials // Proceedings of the XXV Russian Particle Accelerator Conference (RUPAC 2014), Obninsk, Russia, 06-10 October 2014. – P. 113-115.
 13. Bayanov B., Burdakov V., Ivanov A., Kasatov D., Kolesnikov J., Koshkarev A., Kuznetsov A., Makarov A., Ostreinov Yu., Sokolova E., Sorokin I., Sycheva T., Taskaev S., Shchudlo I., Kanygin V., Kichigin A., Zdanova M., Yarullina A., Frolov S., Lezhnin S., Byvaltsev V., Gavrilova Yu., Gromilov S., Muhamadiyarov R., Zaidi L. Readiness for Boron Neutron Capture Therapy // Proc. International Conference on Biomedical Engineering and Computational Technologies (SIBIRCON), 28-30 October, 2015, Novosibirsk, Russia. – P. 139-143.
 14. Sokolova E., Kasatov D., Kolesnikov Ya, Shchudlo I., Taskaev S. Measurement of the proton beam profile via an activation method of diagnostics // Proceedings of the XXV Russian Particle Accelerator Conference (RuPAC 2016), 21-25 November 2016, St. Petersburg, Russia. – THPSC070.

15. Taskaev S., Kasatov D., Makarov A., Shchudlo I., Badrutdinov A., Higashi Y., Miyazawa T., Sugawara H., Bykov T., Kolesnikov Ia, Koshkarev A., Sokolova E., Gromilov S. *In situ* observation of blistering of a metal irradiated with 2 MeV protons // Proc. of the 9th International Particle Accelerator Conference, April 29 - May 4, 2018, Vancouver, Canada. – MOPML063.
16. 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. – 2019. – № 2709682.
17. Shchudlo I., Kasatov D., Makarov A., Sycheva T., Taskaev S. Studying of gamma-ray and neutron radiation in case of 1 – 2 MeV proton beam interaction with various construction materials // Book of abstracts of the 16 International Congress on Neutron Capture Therapy, June 14-19, 2014, Helsinki, Finland. – P. 206.
18. Taskaev S., Burdakov A., Ivanov A., Kanygin V., Kasatov D., Koshkarev A., Kuznetsov A., Ostreinov Yu., Makarov A., Shchudlo I., Sorokin I., Sycheva T. Neutron Source for Boron Neutron Capture Therapy // 15th International Congress on Radiation Research ICRR2015, 25-29 May 2015, Kyoto, Japan. – 4-PS8C-02.
19. Aleynik V., Gubanova N., Kasatov D., Kuznetsov A., Makarov A., Morozov R., Taskaev S., Shchudlo I. VITA neutron source for BNCT - status and prospects // Book of abstracts of the 7th Young Researchers' Boron Neutron Capture Therapy Meeting, 22-26 September, Granada, Spain. – P. 16.
20. Kasatov D., Makarov A., Taskaev S., Shchudlo I. Measurement of the dose rate and the radiation spectrum of the interaction of 2 MeV proton beam with a variety of structural materials // Abstracts of the 8th Young Researchers BNCT Meeting, 13-17 September 2015, Pavia, Italy. – P. 89.
21. Bayanov B., Kasatov D., Makarov A., Shchudlo I., Taskaev S. Lithium neutron producing target // Book of abstracts of the 17th International Congress on Neutron Capture Therapy, October 2-7, 2016, University of Missouri, Columbia, Missouri, USA. – P. 246.

22. Касатов Д.А., Макаров А.Н., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Ускорительный источник нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии // XIII Забабахинские научные чтения, РФЯЦ-ВНИИТФ, 20-24 марта 2017, Снежинск. Тезисы докладов. – С. 273.
23. Kasatov D., Ivanov A., Iarullina A., Kolesnikov Ya., Kanygin V., Kichigin A., Kuznetsov A., Koshkarev A., Makarov A., Mechetina L., Ostreinov Yu., Taskaev S., Shchudlo I., Sokolova E., Sorokin I., Volkova O. Accelerator based neutron source for Boron Neutron Capture Therapy of malignant tumors // Neutron and Ion Dosimetry Symposium (NEUDOS-13), 14-19 May 2017, Krakow, Poland.
24. Badrutdinov A., Bykov T., Gromilov S., Higashi Y., Kasatov D., Kolesnikov Ya., Koshkarev A., Makarov A., Miyazawa T., Shchudlo I., Sokolova E., Sugawara H., Taskaev S. Investigation of the long-term exposure of a high power proton beam on the Ta-substrate of a neutron-generating target // Programme and Abstracts of the 9th Young Researchers' BNCT Meeting, 13-15 November 2017, Kyoto, Japan. – P. 103.
25. Badrutdinov A., Bykov T., Gromilov S., Higashi Y., Kasatov D., Kolesnikov Ya., Koshkarev A., Makarov A., Miyazawa T., Shchudlo I., Sokolova E., Sugawara H., Taskaev S. *In-situ* observation of blistering during irradiation of metals by protons // Programme and Abstracts of the 9th Young Researchers' BNCT Meeting, 13-15 November 2017, Kyoto, Japan. – P. 106.
26. Kasatov D., Taskaev S., Sycheva T., Zaidi L. Activation foil measuring on accelerator based neutron source // Programme and Abstracts of the 9th Young Researchers' BNCT Meeting, 13-15 November 2017, Kyoto, Japan. – P. 68.
27. Badrutdinov A., Bykov T., Gromilov S., Higashi Y., Kasatov D., Kolesnikov I., Koshkarev A., Makarov A., Miyazawa T., Shchudlo I., Sokolova E., Sugawara H., Taskaev S. *In Situ* observations of blistering of a metal irradiated with 2-MeV protons // Book of abstracts of the 18th International Congress on Neutron Capture Therapy, October 28 - November 4, 2018, Taipei, Taiwan. – P. 60-62.

28. Касатов Д.А. Ускорительный источник нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии // III Научно-практическая конференция "Наука. Медицина. Инновации", 20 мая 2020, Новосибирск.
29. Locher G.L. Biological effects and therapeutic possibilities of neutrons // *Am. J. Roentgenol. Radium Ther.* – 1936. – V. 36, № 1. – P. 1-13.
30. Chadwick J. The existence of a neutron // *Proc. R. Soc. London.* – 1932. – V. A 136. – P. 692-708.
31. Taylor H.J., Goldhaber M. Detection of nuclear disintegration in a photographic emulsion // *Nature (London).* – 1935. – V. 135. – P. 341-348.
32. 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.
33. 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.
34. Slatkin D. A history of boron neutron capture therapy of brain tumours // *Brain.* – 1991. – V. 114. – P. 1609-1629.
35. Sauerwein W. Principles and history of neutron capture therapy // *Strahlenther Onkol.* – 1993. – V. 169, № 1. – P. 1-6.
36. 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.
37. Hatanaka H. Clinical results of boron neutron capture therapy // *Basic Life Sci.* – 1990. – V. 54, № 15. – P. 15-21.
38. 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.

39. 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.
40. 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.
41. 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.
42. Joensuu H., Kankaanranta L., Seppala T., Auterinen I., Kalio M., Kulvik M., Laakso J., Vahatalo J., Kortensniemi M., Kotiluoto P., Seren T., Karila J., Brander A., Jarviluoma E., Ryyanen 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.
43. 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.
44. Dbaly V., Tovarys F., Honova H., Petruzalka 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.

45. 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.
46. 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.
47. 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.
48. Kato I., Ono K., Sakurai Y., Ohmae M., Maruhashi A., Imahori Y., Kirihata M., Nakazawa M., Yura Y. Effectiveness of BNCT for recurrent head and neck malignancies // *Appl. Radiat. Isot.* – 2004. – V. 61, № 5. – P. 1069-1073.
49. Kankaanranta L., Seppala T., Koivunoro H., Saarilahti K., Atula T., Collan J., Salli E., Kortensniemi 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.
50. Tamura Y., Miyatake S., Nonoguchi N., Miyata S., Yokoyama K., Doi A., Kuroiwa T., Asada M., Tanabe H., Ono K. Boron neutron capture therapy for recurrent malignant melanoma. Case report // *J. Neurosurg.* – 2006. – V. 105, № 6. – P. 898-903.
51. 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.

52. 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.
53. Kato T., Hirose K., Tanaka H., Motoyanagi T., Arai K., Harada T., Takeuchi A., Kato R., Mitsumoto T., Yajima S., Takai S. Quality assurance of an accelerator-based boron neutron capture therapy system: Dosimetric and mechanical aspects based on initial experience // *Abstract Book of the 18th International Congress on Neutron Capture Therapy, October 28 – November 2, 2018. Taipei, Taiwan.* – P. 217-219.
54. Tahara Y., Abe S., Akiyama Y., Kamei Y., Tsutsui T., Yokobori H., Unno Y., Baba M. A BNCT neutron generator using a 30 MeV proton beam // *Advanced in Neutron Capture Therapy 2006. Proc. 12th Intern. Congress Neutron Capture Therapy. October 9-13, 2006. Takamatsu, Kagawa, Japan.* – 2006. – P. 327-330.
55. Tanaka H., Sakurai Y., Suzuki M., Masunaga S., Mitsumoto T., Fujita K., Kashino G., Kinashi Y., Liu Y., Takada M., Ono K., Maruhashi A. Experimental verification of beam characteristics for cyclotron-based epithermal neutron source (C-BENS) // *Appl. Radiat. Isot.* – 2011. – V. 69, Iss. 12. – P. 1642-1645.
56. Mitsumoto T., Yajima S., Tsutsui H., Ogasawara T., Fujita K., Tanaka H., Sakurai Y., Maruhashi A. Cyclotron-based neutron source for BNCT // *Proc. XIV International Congress on Neutron Capture Therapy, October 25-29, 2010, Buenos Aires, Argentina.* – 2010. – P. 510-522.
57. Masui S., Asano T. Current Status of BNCT Clinical Trials in Japan // *Abstract Book of the 18th International Congress on Neutron Capture Therapy, October 28 – November 2, 2018. Taipei, Taiwan.* – P. 93-94.
58. 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 (^{10}B) 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.
59. Miyatake S.-I., Kawabata S., Goto H., Narita Y., Suzuki M., Hirose K., Takai Y., Ono K., Ohnishi T., Tanaka H., Kato T. Accelerator-based BNCT in rescue in rescue treatment of patients with recurrent GBM: A multicenter phase II study // *Journal of Clinical Oncology*. – 2020. – V. 38. – Iss. 15. – 2536.
60. <https://www.shi.co.jp/english/info/2019/6kgpsq0000002ji0.html>
61. <http://southerntohoku-bnct.com/news/20200601.html> (НОВОСТЬ 01.06.2020)
62. Kumada H., Matsumura A., Sakurai H., Sakae T., Yoshioka M., Kobayashi H., Matsumoto H., Kiyanagi Y., Shibata T., Nakashima H. Project for the development of the linac based NCT facility in University of Tsukuba // *Appl. Radiat. Isot.* – 2014. – V. 88. – P. 211-215.
63. Kumada H., Kurihara H., Yoshioka M., Kobayashi H., Matsumoto H., Sugano T., Sakurai H., Sakae T., Matsumura A. Development of beryllium-based neutron target system with three-layer structure for accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy // *Appl. Radiat. Isot.* – 2015. – V. 106. – P. 78-83.
64. Abe Y., Fuse M., Fujii R., Nakamura M., Imahoru Y., Itami J. Hospital-based boron neutron capture therapy in National Cancer Center. An installation design for the accelerator-based epithermal neutron source // *Abstracts of 15th Intern. Congress on Neutron Capture Therapy, 10-14 September 2012, Tsukuba, Japan.* – 2012. – P. 109-110.
65. Willis C., Lenz J., Swenson D. High-power lithium target for accelerator-based BNCT // *Proc. XXIV Linear Accelerator Conference, 29 September – 3 October 2008, Victoria, British Columbia, Canada.* – 2008. – P. 223-225.
66. Porra L., Seppala T., Vaalavirta L., Auterinen I., Koivunoro H., Eide P., Park B., Smick N., Tenhunen M. Commissioning of the nuBeam BNCT neutron source at Helsinki University Hospital Cancer Center // *Abstract Book of the 18th International Congress on Neutron Capture Therapy, October 28 – November 2, 2018. Taipei, Taiwan.* – P. 72-73.

67. Smick T., Ryding G., Farrell P., Smick N., Park W., Eide P., Sakase T., Venkatesan M., Vyvoda M. Hyperion™ accelerator technology for Boron Neutron Capture Therapy // Book of abstracts of the 16th Intern. Congress on Neutron Capture Therapy, June 14-19, 2014, Helsinki, Finland. – 2014. – P. 138-139.
68. Smick N., Park W. Hyperion accelerator technology for BNCT // Book of abstracts of the Workshop on Accelerator based Neutron Production, April 14-15, 2014, Padova, Italy. – P. 14.
69. Bayanov B., Belov V., Bender E., Bokhovko M., Dimov G., Kononov V., Kononov O., Kuksanov N., Palchikov V., Pivovarov V., Salimov R., Silvestrov G., Skrinsky A., Taskaev S. Accelerator based neutron source for the neutron-capture and fast neutron therapy at hospital // Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A. – 1998. – V. 413. – P. 397-426.
70. Таскаев С.Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов // Дисс. доктора физ.-мат. наук: 01.04.01 – Новосибирск. – 2014. – 295 с.
71. Таскаев С.Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов // Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 2015. – Т. 46, № 6. – С. 1770-1830.
72. Wang C., Blue T., Gabauer R. A neutronic study of an accelerator-based neutron irradiation facility for boron neutron capture therapy // Nucl. Technol. – 1989. – V. 84. – P. 93-107.
73. Yanch J., Zhou X., Shefer R., Klinkowstein R. Accelerator-based epithermal neutron beam design for neutron capture therapy // Med. Phys. – 1992. – V. 19. – P. 709-721.
74. Anderson O., Alpen E., Kwan J., Wells R. DeVries G., Faltens A., Reginato L. ESQ-focused 2.5 MeV dc accelerator for BNCT. Proc. 4th Europ. Particle Accelerator Conf., June 27 – July 21, 1994, London. – 1994. – P. 2619-2621.
75. Esposito J., Colautti P., Pisent A., Tecchio L., Agosteo S., Cebbalos Sanchez C., Conte V., Nardo L., Gervash A., Giniyatulin R., Moro D., Makhankov A., Mazul I., Rosi G., Rummyantsev M., Tinti R. The accelerator driven SPES-BNCT project at INFN Legnaro LABS // Proc. 8th Intern. Topical Meeting on Nuclear Applications

- and Utilization of Accelerators, July 29 – August 2, 2007, Pocatello, Idaho. – 2007. – P. 380-387.
76. Pisent A. High intensity accelerators for neutron production // Workshop on Accelerator based Neutron Production, 14-15 April 2014, INFN Laboratori Nazionali di Legnaro, Italy. https://agenda.infn.it/event/7214/contributions/66262/attachments/48139/56963/Pisent_ABNP2014.pdf
77. Альбертинский Б.И., Курицына И.В., Николаев О.Ф., Овчинников О.Б. Источник высокого напряжения для ускорителей ионов и электронов на 2 МэВ // Приборы и техника экспериментов. – 1971. – В. 3. – С. 43-46.
78. Beynon T., Forcey K., Green S., Cruickshank G., James N. Status of the Birmingham accelerator based BNCT facility // In: Sauerwein W., Moss R. and Wittig A. (eds.). Research and Development in Neutron Capture Therapy, Bologna: Monduzzi Editore, Intern. Proc. Division. – 2002. – P. 225–228.
79. Astrelin V., Burdakov A., Bykov P., Ivanov I., Ivanov A., Jongen Y., Konstantinov S., Kudryavtsev A., Kuklin K., Mekler K., Polosatkin S., Postupaev V., Rovenskikh A., Sinitskiy S., Zubairov E. Blistering of the selected materials irradiated by intense 200 keV proton beam // J. Nucl. Mater. – 2010. – V. 396. – P. 43-48.
80. Park W., Konish S., Smick T., Sakase T. Neutron target for Boron Neutron Capture Therapy // Patent US 2017/0062086, March 2, 2017.
81. 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 future plans // Eur. Phys. J. A. – 2018. – V. 54: 91. – P. 1-32.
82. Kobayashi T., Miura K., Hayashizaki N., Aritomi M. Development of liquid-lithium film jet-flow for the target of ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reactions for BNCT // Appl. Radiat. Isot. – 2014. – V. 88. – P. 198-202.

83. Баянов Б.Ф., Белов В.П., Таскаев С.Ю. Нейтроногенерирующая мишень ускорительного источника нейтронов для нейтронозахватной терапии // Препринт ИЯФ 2005-4. Новосибирск. – 2005.
84. Баянов Б.Ф., Журов Е.В., Таскаев С.Ю. Измерение толщины литиевого слоя // Приборы и техника эксперимента. – 2008. – № 1. – С. 160-162.
85. Баянов Б.Ф., Таскаев С.Ю., Ободников В.И., Тишковский Е.Г. Влияние остаточного газа на литиевый слой нейтроногенерирующей мишени // Приборы и техника эксперимента. – 2008. – № 3. – С. 119-124.
86. 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, Iss. 5. – P. 817-821.
87. 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 // Приборы и техника эксперимента. – 2010. – № 6. – С. 117-120.
88. Bayanov B., Belov V., Taskaev S. Neutron producing target for accelerator based neutron capture therapy // J. Phys.: Conference Series. – 2006. – V. 41. – P. 460-465.
89. Кононов В.Н., Боховко М.В., Кононов О.Е., Кононова Н.П. Гамма-излучение нейтронного источника на основе реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ // Препринт ФЭИ-2643, Обнинск. – 1997. – 10 с.
90. Savidou A., Aslanoglou X., Paradellis T., Pilakouta M. Proton induced thick target γ -ray yields of light nuclei at the energy region $E_p = 1.0\text{--}4.1$ MeV // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – 1999. – V. 152. – P. 12-18.
91. Belchenko Yu., Grigoryev E. Surface-plasma negative ion source for the medicine accelerator // Rev. Sci. Instrum. – 2002. – V. 73. – P. 939-942.
92. Belchenko Yu., Gusev I., Khilchenko A., Kvashnin A., Rashchenko V., Sanin A., Savkin V., Zubarev P. Advanced direct current negative-ion source for accelerator use // Rev. Sci. Instrum. – 2006. – V. 77. – 03A527.

93. Баркова В.Г., Корябкин О.М., Репков А.В., Чудаев В.Я. Автоматизированная система радиационного контроля электрон-позитронного ускорительно-накопительного комплекса ВЭПП-4 // Труды 9-го Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц, т. 2, Дубна, 1985, с. 318.
94. 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, Вып. 3. – С. 74-80.
95. 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.
96. Таблицы физических величин, Справочник под ред. И.К. Кикоина // Москва, Атомиздат. – 1976.
97. 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.
98. 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.
99. Anttila A., Hanninen R., Raisanen J. Proton-induced thick-target gamma-ray yields for the elemental analysis of the $Z = 3-9, 11-21$ elements // J. Radioanalytical Chemistry. – 1981. – V. 62. – P. 293–306.
100. Lee C.L., Zhou X.-L., Kudchadker R.J., Harmon F., Harker Y.D. A Monte Carlo dosimetry-based evaluation of the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold for accelerator boron neutron capture therapy // Med. Phys. – 2000. – V. 27. – P. 192-202.
101. 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 ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction // J. Nucl. Science and Techn. – 2017. – V. 54. – P. 253–259.
102. Brown A.B., Synder C.W., Fowler W.A., Lauritsen C.C. Excited states of the mirror nuclei, Li^7 and Be^7 // Phys. Rev. – 1951. – V. 82. – P. 159-180.
103. Mozer F., Fowler W.A., Lauritsen C.C. Inelastic scattering of protons by Li^7 // Phys. Rev. – 1954. – V. 93. – P. 829-830.
104. Presser G., Bass R. Reactions ${}^7\text{Li} + n$, ${}^7\text{Li} + p$ and excited states of the $A = 8$ system // Nucl. Phys. A. – 1972. – V. 182. – P. 321-341.
105. Aslam, Prestwich W.V., McNeill F.E. Thin target ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ inelastic gamma-ray yield measurements // J. Radioan. Nucl. Chemistry. – 2002. – V. 254. – P. 533-544.
106. Mateus R., Jesus A.P., Braizinha B., Cruz J., Pinto J.V., Ribeiro J.P. Proton-induced γ -ray analysis of lithium in thick samples // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – 2002. – V. 190. – P. 117-121.
107. Handbook of Stable Isotope Analytical Techniques. Volume II. Ed.: Pier A. de Groot. – Elsevier. – 2009. – P. 1123-1321.
108. Lieberman K., Alexander G.J., Sechzer J.A. Stable isotopes of lithium: dissimilar biochemical and behavioral effects // Experientia. – 1986. – V. 42. – P. 985-987.
109. http://www.doza.ru/docs/radiation_control/dbg_s11d.pdf
110. Andersen H., Ziegler J. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements. Volume 3 of the stopping and ranges of ions in matter // New York, Toronto, Oxford, Sydney, Frankfurt, Paris: Pergamon Press Inc. – 1977.
111. Lee C.L., Zhou X.-L. Thick target neutron yields for the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B. – 1999. – V. 152. – P. 1–11.
112. Nuclear Reaction Data Library ENDF/B-VIII.0.
113. Ono K. Prospects for new era of boron neutron capture therapy and subject for the future // Therapeutic Radiology and Oncology. – 2018. – V. 2. – P. 1-17.
114. Edgecock T., Bennett J., Green S., Phoenix B., Scott M. A study of the production of neutrons for Boron Neutron Capture Therapy using a proton accelerator // Proceedings of IPAC2014, Dresden, Germany. – 2014. – WEPRO099.

115. 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 // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2015. – V. 305. – P. 935–942.
116. Fagotti E. MUNES project: status and perspectives of an RFQ based neutron facility in Italy // *Symposium for North Eastern Accelerator Personnel, September 30 – October 5, 2012, INFN Laboratori Nazionali di Legnaro, Italy*.
117. Kobayashi H., Kurihara T., Matsumoto H., Yoshioka M., Kumada H., Matsumura A., Sakurai H., Hiraga F., Kiyonagi Y., Nakamura T., Nakashima H., Shibata 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 // *Proceedings of IPAC2012, New Orleans, Louisiana, USA*. – 2012. – THPPR048.
118. Koay H., Toki H., Fukuda M., Seki R., Hara S., Shima T., Koizumi M., Takashina M., Morimoto N. Conceptual design of compact-multichannel neutron moderator for accelerator based BNCT system // *Proceedings of the 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 1-3, 2017, Sapporo, Japan, PASJ2017*. – 2017. – WEP124.
119. 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 // *Materials Transactions*. – 2013. – V. 54, No. 9. – P. 1760-1764.
120. Мартыненко Ю.В. Разрушение материалов при блистеринге // *Физика плазмы*. – 1977. – Т. 3, Вып. 3. – С 697-700.
121. Гусева М., Мартыненко Ю. Радиационный блистеринг // *Успехи физических наук*. – 1981. – Т. 135, Вып. 4. – С. 671-691.
122. Шерцер Б. Развитие рельефа на поверхности вследствие имплантации ионов газа. – Глава 7. – С. 361-469 // *Распыление твердых тел ионной бомбардировкой*. Под ред. Р. Бериша // М., "Мир". – 1986.

123. Yadava R., Irobi Singh N., Nigam A. Sponge-like blisters on copper by H⁺-ion implantation at ambient temperatures // *J. Phys. D: Applied Physics*. – 1980. – V. 13. – P. 2077-2080.
124. Melnychuk S., Meilunas R. Development of a thin film 9.17 MeV gamma ray production target for the contraband detection system // *Proc. Particle Accelerator Conference, New York*. – 1999. – P. 2599-2601.
125. Kuznetsov A., Belchenko Yu., Burdakov A., Davydenko V., Donin A., Ivanov A., Konstantinov S., Krivenko A., Kudryavtsev A., Mekler K., Sanin A., Sorokin I., Sulyaev Yu., Taskaev S., Shirokov V., Eidelman Yu. The detection of nitrogen using nuclear resonance absorption of mono-energetic gamma rays // *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research*. – 2009. – V. A 606. – P. 238-242.
126. 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.
127. 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.
128. ICDD. Powder Diffraction File, PDF-2/Release 2016; International Centre for Diffraction Data: Newtown Square, PA, USA. – 2016.
129. 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.
130. 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.
131. Иванов А.А., Касатов Д.А., Кошкарев А.М., Макаров А.Н., Остреинов Ю.М., Сорокин И.Н., Таскаев С.Ю., Щудло. Получение протонного пучка с током 5 мА в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией // *Письма в журнал технической физики*. – 2016. – Т. 42. – С. 1-8.

132. 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, no. 1. – P. 1-9.
133. 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, no. 2. – P. 101-107.
134. 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. – Т. 1. – 28480.
135. Таскаев С.Ю. Разработка ускорительного источника эпитепловых нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии // *Физика элементарных частиц и атомного ядра*. – 2019. – Т. 50, № 5. – С. 657-669.
136. 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. Biol.* – 2020. – V. 96, № 7. – P. 868-878.
137. База данных ENDF/B-VIII.0.
138. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения: Публикация 38 МКРЗ: В 2 ч. Ч. 1. В 2 кн. Кн. 1. Пер. с англ. – М.: Энергоатомиздат. – 1987.
139. Таскаев С.Ю., Заборонок А.А. Способ измерения поглощенной дозы при бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей // Патент на изобретение. – 2017. – № 2606337.

140. Shoshin A., Burdakov A., Ivantsivskiy M., Polosatkin S., Klimenko M., Semenov A., Taskaev S., Kasatov D., Shchudlo I., Makarov A. Qualification of boron carbide ceramics for use in ITER ports // IEEE Transactions on Plasma Science. – 2020. – V. 48, issue 6. – P. 1474-1478.
141. Касатов Д.А., Кошкарев А.М., Макаров А.Н., Остринов Г.М., Таскаев С.Ю., Щудло И.М. Источник быстрых нейтронов на основе ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией и литиевой мишени // Приборы и техника эксперимента. – 2020. – Т. 5. – С. 5-9.

Приложение

Табл. 7. Выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени с природным содержанием лития.

Табл. 8. Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$.

Во всех таблицах использованы следующие обозначения:

E энергия протонов

ΔE стандартное отклонение E

Y выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени с природным содержанием лития

ΔY статистическая дисперсия Y

σ поперечное сечение реакции

$\Delta\sigma$ статистическая дисперсия σ

Табл. 7. Выход 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени с природным содержанием лития.

E , кэВ	ΔE , кэВ	Y , $10^7 \mu\text{Кл}^{-1}$	ΔY , $10^7 \mu\text{Кл}^{-1}$
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
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
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

Табл. 8. Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$.

E , кэВ	ΔE , кэВ	σ , 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
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
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