

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ
ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ ИМ. Г.И. БУДКЕРА
СИБИРСКОГО ОТДЕЛЕНИЯ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи

Бикчурина Марина Игоревна

**ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРИРУЮЩИХ СВОЙСТВ
ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ**

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

Новосибирск – 2024

Оглавление

	Стр.
Введение	3
Глава 1. Обзор методов измерения	10
1.1 Литиевая нейтроногенерирующая мишень.....	10
1.2 Обзор методов измерения выхода нейтронов.....	16
1.3 Обзор методов определения элементного состава вещества пучками частиц	22
1.4 Обзор методов измерения сечения ядерной реакции	31
1.5 Выводы.....	33
Глава 2. Измерение выхода нейтронов из литиевой мишени.....	34
2.1 Экспериментальная установка	34
2.2 Калибровка γ -спектрометра.....	37
2.3 Измерение выхода нейтронов по активации бериллия-7	49
2.4 Выводы.....	62
Глава 3. Исследование элементного состава литиевой мишени	64
3.1 Конструкция литиевой мишени	64
3.2 Исследование элементного состава литиевого слоя мишени	69
3.3 Серия I. Исследование чистоты свеженапыленного литиевого слоя.....	71
3.4 Серия II. Исследование влияния воздуха на чистоту литиевого слоя	77
3.5 Серия III. Исследование чистоты литиевого слоя при облучении пучком протонов.....	82
3.6 Выводы.....	85
Глава 4. Измерение сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.....	87
4.1 Данные о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$	87
4.2 Схема проведения экспериментального исследования	90
4.3 Результаты измерения и их обсуждение	92
4.4 Выводы.....	109
Заключение.....	110
Список литературы.....	114

Введение

Актуальность темы исследования

Распространенность онкологических заболеваний неуклонно растет. Одним из перспективных подходов в лечении злокачественных опухолей рассматривается бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) [1, 2]. БНЗТ является формой бинарной радиотерапии, когда в клетках опухолей с помощью специальных препаратов накапливают стабильный изотоп бор-10, а затем облучают потоком тепловых нейтронов (0,5 эВ – 10 кэВ). В результате захвата нейтрона атомным ядром бор-10 (сечение захвата теплового нейтрона 3838 барн) происходит ядерная реакция $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ с энергосвободением 2,79 МэВ. Поскольку длина пробега образующихся в процессе реакции α -частицы и ядра лития менее 10 мкм, то практически вся энергия ядерной реакции выделяется в объеме опухолевой клетки, что приводит к ее гибели.

Положительные результаты клинических испытаний, проведенных на ядерных реакторах с 1970-х годов, привели к обсуждению возможности внедрения методики БНЗТ в клиническую практику с применением ускорителей заряженных частиц, обеспечивающих лучшее качество терапевтического пучка нейтронов. С 1 июня 2020 г. в Корияма и Осака (Япония) началось клиническое применение БНЗТ в первых двух клиниках, оснащенных 30 МэВ 1 МА циклотроном с бериллиевой мишенью компании Сумитомо [3, 4]; с 8 октября 2022 г. в г. Сямынь (Китай) к проведению клинических испытаний методики приступили в клинике, оснащенной 2,5 МэВ 10 МА ускорителем-танDEMом с вакуумной изоляцией и литиевой мишенью ИЯФ СО РАН [5]; с 27 декабря 2022 г. – в клинике г. Инчхон (Южная Корея), оснащенной 10 МэВ 2 МА линаком с бериллиевой мишенью [6]. В ближайшее время к проведению клинических испытаний методики планируют приступить еще в ряде стран, в том числе и в Российской Федерации, для чего ИЯФ СО РАН изготавливает ускорительный

источник нейтронов VITA. На сайте Международного сообщества нейтрон-захватной терапии представлено 26 проектов ускорительных источников нейтронов [7], в большинстве из которых для генерации нейтронов используют литиевую мишень.

Помимо основного применения в рамках БНЗТ литиевая генерирующая мишень в настоящий момент применяется во множестве других проектов, в том числе для исследования таких фундаментальных вопросов, как изучение термоядерных реакций, участвующих в звездном цикле синтеза тяжелых элементов во Вселенной.

Актуальной задачей становится исследование и подтверждение генерирующих свойств литиевой мишени для планирования и проведения терапии.

Степень разработанности темы исследования

Литиевая мишень в наибольшей степени подходит для применения в БНЗТ, поскольку в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ обеспечивается большой выход нейтронов с низкой энергией, но считалась плохим кандидатом из-за ее механических, химических и термических свойств. Также считалось, что кратковременное взаимодействие мишени с воздухом существенно снизит выход нейтронов. Примечательно, что выход нейтронов из разработанной литиевой мишени до настоящего момента получали исключительно расчетными методами. В ИЯФ СО РАН предложена, разработана и реализована тонкая литиевая мишень¹ [8–10], используемая на экспериментальной установке в ИЯФ СО РАН, в клинике г. Сямыня (Китай), и планируемая к использованию в клиниках Москвы (Россия) и Павии (Италия).

¹ Термин “тонкая литиевая мишень” означает, что протоны проходят слой лития с энергией, достаточной для генерации нейтронов в пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, и поглощаются в медной подложке, на которую нанесен литий, как только энергия протонов становится ниже 1,882 МэВ – порога реакции.

Цели и задачи

Целью работы является измерение выхода нейтронов из разработанной литиевой мишени, исследование содержания примесей в литиевом слое и динамики их накопления по мере облучения мишени пучком протонов, измерение сечения ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие **задачи**:

1. Измерить выход нейтронов из разработанной литиевой мишени и сравнить с расчетным значением;
2. Изучить элементный состав литиевого слоя мишени и определить влияние примесей на выход нейтронов;
3. Исследовать динамику накопления примесей при облучении литиевой мишени пучком протонов;
4. Измерить сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

Научная новизна

Установлено, что выход нейтронов из разработанной литиевой мишени, измеренный при энергии протонов от 2 до 2,2 МэВ с точностью 5 %, согласуется с расчетным.

Установлено, что при вакуумном термическом напылении лития на подложку мишени литиевый слой покрывается пленкой толщиной от 10 до 50 нм, состоящей из атомных ядер лития, кислорода и углерода, защищающей литий от взаимодействия с сухим воздухом.

Установлено, что при длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см² образовавшаяся тонкая пленка увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. При длительном облучении мишени пучком протонов с плотностью мощности выше 3 кВт/см² слой лития становится жидким и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате

радиационного блистеринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

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

Теоретическая и практическая значимость

Основная теоретическая и практическая значимость диссертационной работы состоит в том, что измерен выход нейтронов из тонкой литиевой мишени, используемой и планируемой к использованию для терапии пациентов, что критически важно для планирования терапии и оценки ее результатов. Получено понимание того, почему слой лития оказывается стойким к воздействию сухого воздуха, что может быть полезным при разработке технологии поставки мишени от производителя потребителю.

Установлено, что достоверное сечение ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ представлено в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0, а не в ENDF/B-VIII.0 или TENDL-2019.

Методология и методы исследования

Методологической основой диссертационной работы являются экспериментальные методы исследования, включая численное моделирование и экспериментальное исследование генерирующих свойств литиевой мишени, и применение метода сравнения для выявления сходства и различия.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Выход нейтронов из разработанной для бор-нейтронозахватной терапии литиевой мишени, измеренный при энергии протонов от 2 до 2,2 МэВ с точностью 5 %, согласуется с расчетным.

2. При вакуумном термическом напылении лития на подложку мишени литиевый слой покрывается пленкой толщиной от 10 до 50 нм, содержащей литий,

кислород ($40 \cdot 10^{15} - 300 \cdot 10^{15}$ ат/см²) и углерод ($5 \cdot 10^{15} - 20 \cdot 10^{15}$ ат/см²), защищающей литий от взаимодействия с сухим воздухом.

3. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см² пленка, содержащая литий, кислород и углерод, увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

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

Степень достоверности и апробация результатов

Достоверность полученных результатов подтверждена применением большого набора независимых диагностических средств для анализа полученных результатов и тщательным проведением экспериментального исследования. При измерении выхода нейтронов эффективность регистрации HPGe γ -спектрометра определена с использованием девяти эталонных радионуклидных источников фотонного излучения с учетом геометрического размера детектора и влияния загрузки детектора на достоверность регистрации. При измерении сечения реакции толщина литиевого слоя с высокой точностью определена предложенным и реализованным *in situ* методом, а также еще пятью независимыми методиками. Достоверность полученных результатов подтверждена длительной и стабильной генерацией нейтронов, в том числе при успешном лечении домашних животных со спонтанными опухолями [11, 12].

Основные результаты исследований, лежащие в основе диссертации, в виде 8 докладов представлены и обсуждались на 4 международных и 3 российских конференциях: XXVII и XXVIII Всероссийских конференциях по ускорителям заряженных частиц (Алушта, 2021; Новосибирск, 2023) [13, 14], 9-й Международной конференции по компактным ускорительным источникам нейтронов (Япония, 2022) [15], LXXII Международной конференции ЯДРО 2022:

Фундаментальные проблемы и применения (Москва, 2022) [16], 11-й Международной школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Виртуальный конгресс, 2022) [17, 18], 29-м Международном семинаре по взаимодействию нейтронов с атомными ядрами (Дубна, 2023) [19], 2-й школе молодых ученых по синхротронным методам исследования в материаловедении (Новосибирск, 2023) [20].

Работа с результатами проведенных исследований отмечена дипломом третьей степени на 57-й Международной научной студенческой конференции (Новосибирск, 2019) и отобрана в финал VIII Всероссийского молодежного научного форума «Наука будущего – наука молодых» (Орел, 2023).

Результаты работы вошли в научно-квалификационную работу магистра [21], которая успешно защищена в 2021 году.

Исследования поддержаны Российским научным фондом (Соглашение № 19-72-30005, 2019–2022), компанией TAE Technologies, Inc., США (контракт № 17-132, 2017–2020), персональными грантами молодежного конкурса «Рентгеновские, синхротронные, нейтронные методы междисциплинарных исследований» (2022 и 2023).

По теме диссертации опубликовано пять работ, из них четыре в рецензируемых научных журналах, рекомендованных ВАК [22–25] и одна в сборнике тезисов докладов научных конференций [13]. Все работы проиндексированы в международных базах данных SCOPUS и Web of Science Core Collection.

Личный вклад автора в получение научных результатов, лежащих в основе диссертации, является определяющим. Автором лично получены и проанализированы экспериментальные результаты при исследовании генерирующих свойств литиевой мишени [24, 25]. Автором лично измерен выход нейтронов из литиевой мишени и проведено сравнение экспериментальных результатов с теоретическими расчетами [24, 25]. При участии автора проведена

абсолютная калибровка HPGe γ -спектрометра эталонными радионуклидными источниками фотонного излучения [24]. При содействии автора обеспечен пучок протонов с постоянной энергией, что достигнуто использованием поворотного магнита как энергоанализатора и контролем положения пучка на поверхности литиевой мишени [24, 25]. Автором лично освоены и применены для исследований α -спектрометр и средства моделирования исследуемых процессов. Автором определен элементный состав литиевой генерирующей мишени методом обратно отраженных протонов [23]. Автором установлено, что при создании мишени литиевый слой покрывается тонкой пленкой примесей, содержащей атомные ядра лития, кислорода и углерода [23]. Автором исследована зависимость толщины пленки от флюенса пучка протонов при использовании литиевой мишени в условиях, близких к клиническим, а также в условиях повышенной плотности мощности протонного пучка [23]. При ключевом участии автора проведено численное моделирование процессов взаимодействия протонного пучка с литиевой мишенью [23]. При ключевом участии автора измерено сечение ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ [22]. Достоверность результатов обеспечивается несколькими способами измерения толщины литиевого слоя [22]. Автором написаны соответствующие разделы в опубликованных статьях.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Объем диссертации составляет 138 страницы и включает 44 рисунка, 10 таблиц и список литературы из 164 наименований.

Глава 1. Обзор методов измерения

В главе 1 приведен список установок, генерирующих нейтроны для БНЗТ, кратко описана литиевая мишень, разработанная в ИЯФ СО РАН, дан обзор методов измерения выхода нейтронов, элементного состава мишени и сечения ядерных реакций.

1.1 Литиевая нейтроногенерирующая мишень

Для генерации нейтронов с целью применения в БНЗТ преимущественно рассматривают четыре реакции: ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$, ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$, ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$ [2], из которых наилучшей признается реакция ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ благодаря большому выходу нейтронов с низкой энергией [8]. Применение литиевой мишени с ускорителем протонов с относительно низкой энергией, но с большим током обеспечивает требуемую для БНЗТ плотность потока эпитепловых нейтронов с наименьшим вкладом нежелательных быстрых нейтронов и тепловых нейтронов. Из 24 проектов, указанных в недавно изданной книге МАГАТЭ [26], в 15-и применяют литиевые мишени, в 9-и – бериллиевые (таблица 1).

Некоторые из проектов уже вводят в клиническую практику метод бор-нейтронозахватной терапии. Это и многие другие применения требуют от установки стабильной генерации потока нейтронов с известными основными характеристиками. Однако, несмотря на столь многочисленное применение литиевой мишени в разнообразных проектах, некоторые вопросы ранее никем не исследовались.

Таблица 1 – Современное состояние и характеристики ускорителей, предназначенных для бор-нейтронозахватной терапии

Институт/Страна	Текущий статус	Мишень /Реакция	Энергия пучка (МэВ)	Ток (мА)	Мощность (кВт)	Ссылка
Циклотроны						
Kyoto University, Япония	Клинические испытания и исследования	5,5 мм ${}^9\text{Be}(p,n)$	30	1	30	[27, 28]
Southern Tohoku Hospital, Япония	Лечение, покрываемое страхованием	5,5 мм ${}^9\text{Be}(p,n)$	30	1	30	[27–29]
Kansai BNCT Research Center, Япония	Лечение, покрываемое страхованием	5,5 мм ${}^9\text{Be}(p,n)$	30	1	30	[27–29]
Pengbo Hainan BNCT Center, Китай	Планирование проекта	5,5 мм ${}^9\text{Be}(p,n)$	30	1	30	
Электродинамические линейные ускорители						
A-BNCT, Dawon Medax, Южная Корея	RFQ-DTL: предклиническое испытания	Толстая ${}^9\text{Be}(p,n)$	10	8	80	[30]
Tsukuba, Япония	RFQ-DTL: клинические испытания	0,5 мм ${}^9\text{Be}(p,n)$	8	10	80	[31, 32]
SARAF, Сорек, Израиль*	RFQ-DTL: в стадии разработки	Жидкая $\text{Li}(p,n)$	2,5	20	50	[33]
INFN, Леньяро, Италия*	RFQ: в процессе разработки	Твердая ${}^9\text{Be}(p,n)$	5	30	150	[34]
ИНЕР, BNCT-01, Дунгуань, Китай	RFQ: эксперименты	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	3,5	5	17,5	[35]
ИНЕР, BNCT-02, Дунгуань, Китай	RFQ: в процессе строительства	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,8	20	56	[35]
National Cancer Center, Токио, Япония	RFQ: клинические испытания	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,5	20	50	[36–39]
Edogawa Hospital, Япония	RFQ: ввод в эксплуатацию	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,5	20	50	[27]

Продолжение таблицы 1

Институт/Страна	Текущий статус	Мишень /Реакция	Энергия пучка (МэВ)	Ток (мА)	Мощность (кВт)	Ссылка
Электростатические ускорители						
ИЯФ, Новосибирск, Россия*	VITA: эксперименты	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,0–2,3	10	23	[25, 40]
Онкологический центр им. Н.Н. Блохина, Москва, Россия	VITA: в процессе строительства	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,3	7	20	[41, 42]
Xiamen Humanity Hospital, Neuboron BNCT Center, Китай	VITA: клинические испытания и эксперименты	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,5	10	25	[41, 43–46]
CNAO, Павия, Италия	VITA: в процессе строительства	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,5	10	25	[41, 47]
Nagoya University, Япония	Динамитрон: ввод в эксплуатацию	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,8	15	42	[48, 49]
University of Birmingham, Великобритания *	Ускоритель прямого действия: в процессе установки	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,6	30	78	[50]
Helsinki University Hospital, Финляндия	Ускоритель прямого действия: ввод в эксплуатацию	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,6	30	78	[51]
Shonan Kamakura Hospital, Япония	Ускоритель прямого действия: в процессе установки	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,6	30	78	[52]
University Hospital of Brussels, Бельгия	Ускоритель прямого действия: планирование проекта	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,6	30	78	[53]
University of Granada, Испания	Ускоритель прямого действия: в процессе разработки	Твердая ${}^7\text{Li}(p,n)$	2,1	30	63	[54]

Продолжение таблицы 1

Институт/Страна	Текущий статус	Мишень /Реакция	Энергия пучка (МэВ)	Ток (мА)	Мощность (кВт)	Ссылка
CNEA, Буэнос-Айрес, Аргентина	ESQ: в процессе разработки	$^9\text{Be}(d,n)$ тонкая 8 мкм, $^{13}\text{C}(d,n)$ толстая	1,45	30	43	[27, 55–56]
KIRAMS, Южная Корея	ESQ: в процессе разработки	$^9\text{Be}(d,n)$ тонкая 8 мкм, $^{13}\text{C}(d,n)$ толстая	1,45	30	43	[27, 55–56]
Примечание: Проект KIRAMS осуществляется в рамках соглашения о сотрудничестве с CNEA, Аргентина. Установки, обозначенные *, являются неклиническими						

В 2023 г. Международным агентством по атомной энергии издана книга «Advances in Boron Neutron Capture Therapy» объемом 417 страниц [26], которая готовилась широким кругом экспертов с 2017 г. В этой книге подробно освещены практически все аспекты бор-нейтронозахватной терапии: реакции генерации нейтронов, ускорители заряженных частиц, взаимодействие ионов с материалами мишени, замедление и поглощение нейтронов, дозиметрия, фармакокинетика препарата доставки бора, визуализация бора, радиобиология, клинические аспекты. Единственное, чего нет, – нет раздела об экспериментальном подтверждении выхода нейтронов и спектра нейтронов. Причина проста – никто не измерял выход нейтронов из литиевой мишени, разработанной для БНЗТ, никто не измерял спектр эпитепловых нейтронов, требуемых для БНЗТ. В этой книге на стр. 31 написано, что непосредственно измерить спектр нейтронов при всех энергиях сложно (в оригинале: it is difficult to measure the neutron spectrum directly at all energies), имея в виду то, что диапазон энергий нейтронов непрерывен от нескольких миллиэлектрон-вольт до нескольких мегаэлектрон-вольт. Там же на стр. 32 написано: «Поскольку энергетический спектр нейтронов не измеряется напрямую, желательна оценка в сочетании с моделированием методом

Монте-Карло (в оригинале: Since the neutron energy spectrum is not measured directly, evaluation in combination with Monte Carlo simulation is desirable)».

В итоге при проектировании установок, в том числе клинического применения, все ориентируются на результаты численного расчета выхода нейтронов, используя данные о сечении ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, которые у разных авторов различаются [57]. В большинстве случаев используют данные о выходе нейтронов, средней и максимальной энергии нейтронов из статьи [58], иногда используют программу PINO – инструмент для экспериментаторов, позволяющий методом Монте-Карло оценить поток нейтронов и распределение нейтронов по энергии [59].

Таким образом, измерение выхода нейтронов из литиевой мишени, разработанной для БНЗТ, является актуальной задачей и представляется сложной для реализации.

Для измерения выхода нейтронов предполагается использовать тот факт, что продуктом реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ являются не только нейтрон, но и радиоактивное атомное ядро бериллий-7, которое в результате электронного захвата превращается обратно в литий-7 с периодом полураспада 53,22 сут. В 10,3 % случаев распад сопровождается испусканием 478 кэВ фотона. Если не допустить распространения бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер ${}^7\text{Be}$, которое равно количеству сгенерированных нейтронов.

Известно, что на выход нейтронов влияют тяжелые примеси в составе мишени, что особенно актуально для лития как химически активного металла. Тем не менее элементный состав литиевой мишени также ранее не исследовался, как и возможный процесс деградации выхода нейтронов в ходе эксплуатации мишени в стандартных или экстремальных условиях.

В ИЯФ СО РАН предложена и создана стационарная мишень, на которую литиевый слой напыляют в вакууме термическим способом. Основные требования

к литиевой генерирующей мишени сформулированы в работах [8–10] и звучат следующим образом: «Литиевый слой должен быть из чистого металлического лития, должен быть тонким и в твердом состоянии». Первое обеспечивает максимальный выход нейтронов (выход нейтронов из гидрида, оксида и фторида лития меньше, чем из чистого лития, в 1,43, 2 и 3,3 раза соответственно), второе уменьшает поток нежелательных сопутствующих 478 кэВ фотонов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ (толщина лития такая, чтобы на выходе из литиевого слоя энергия протонов была чуть ниже 1,882 МэВ – порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$), третье предотвращает распространение по установке образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7. Подложка, на которую напыляют литиевый слой, должна быть тонкой, интенсивно охлаждаемой, стойкой к радиационным повреждениям, простой в изготовлении и легкоъемной для ее утилизации.

В докторской диссертационной работе научного руководителя С. Ю. Таскаева [8] описаны требования к нейтроногенерирующей мишени и представлена конструкция литиевой мишени, оптимальная для БНЗТ. В кандидатской диссертационной работе Д. А. Касатова [9] определены оптимальные материалы конструкции мишенного узла. В кандидатской диссертационной работе Е. О. Соколовой [10] показано влияние радиационного блистеринга меди на выход нейтронов при имплантации протонов и продемонстрирована стойкость разработанной тонкой литиевой мишени к радиационному блистерингу, что обеспечивает длительную стабильную генерацию нейтронов. Предметом настоящей работы является измерение выхода нейтронов из литиевой мишени, изучение элементного состава литиевого слоя мишени, определение влияния примесей на выход нейтронов, исследование динамики накопления примесей при облучении литиевой мишени пучком протонов и измерение сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

1.2 Обзор методов измерения выхода нейтронов

Нейтрон – тяжелая элементарная частица, не имеющая электрического заряда, и потому ее трудно регистрировать.

Для регистрации медленных нейтронов используют ядерные реакции расщепления легких ядер под действием нейтронов ($^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ и $^3\text{He}(n,p)^1\text{H}$) с регистрацией α -частиц и протонов; ядерные реакции деления тяжелых ядер с регистрацией осколков деления; радиационный захват нейтронов ядрами (n,γ) с регистрацией γ -квантов, а также возбуждение искусственной радиоактивности. Для регистрации α -частиц, протонов и осколков деления применяют ионизационные камеры и пропорциональные счетчики, которые заполняют газообразным BF_3 и другими газами, содержащими бор или тритий, либо покрывают их стенки тонким слоем твердых бора, лития или делящихся веществ. Для регистрации медленных нейтронов используют также сцинтилляционные счетчики. Во всех случаях детекторы нейтронов теряют информацию о кинетической энергии нейтронов.

На ускорительном источнике нейтронов ВИТА, на котором проведено диссертационное исследование, для регистрации медленных нейтронов используют малогабаритный детектор с парой литиевых полистирольных сцинтилляторов, один из которых обогащен бором [60–62], и литий-содержащий сцинтиллятор GS20 (The Saint-Gobain Crystals, США), смонтированный на фотоэлектронном умножителе Hamamatsu R6095 с высоковольтным источником питания MHV12-1.5K1300P (TRACO Electronics, Япония) [63, 64]. Малогабаритным детектором измеряют мощность борной дозы и дозы γ -излучения в воздухе или в водном фантоме [65], литий-содержащим сцинтиллятором – стабильность потока нейтронов [66].

Эффективность регистрации быстрых нейтронов перечисленными выше детекторами во много раз меньше, поэтому быстрые нейтроны предварительно

замедляют в парафиновом или полиэтиленовом блоке, окружающем нейтронный детектор (метод сфер Боннера). Специально подобранные форма и размеры блоков позволяют получить практически постоянную эффективность регистрации быстрых нейтронов. Также достаточно часто, в основном для индивидуальной дозиметрии, используют пузырьковые детекторы. Здесь быстрые нейтроны регистрируют за счет вскипания перегретой жидкости при прохождении сквозь нее вторичной заряженной частицы (ядра отдачи, продукты ядерной реакции), образовавшиеся в результате взаимодействия нейтронов с веществом.

На ускорительном источнике нейтронов ВИТА для регистрации быстрых нейтронов используют дозиметр-радиометр ДКС-96 с блоком детектирования БДМН-96 (ООО "Доза", Россия) [67], устройство детектирования УДМН-100 (ООО "Доза", Россия) [68], универсальный нейтронный спектрометр-дозиметр UNSD-15 Mobile (ООО «Центр АЦП», Москва) [69] и недавно разработанный радиометр быстрых нейтронов с алмазным спектрометрическим детектором РБН-А1 (Проектный центр ИТЭР, Москва) [70]. Переносным дозиметром-радиометром измеряют мощность дозы нейтронного излучения в пультовой установке и в соседних с бункером помещениях, устройством детектирования УДМН-100 – постоянно контролируют мощность дозы в бункере и в коридоре и измеряют стабильность потока нейтронов [66], спектрометр-дозиметром UNSD-15 – измеряют спектр быстрых нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(d,n){}^8\text{Be}$ [71], радиометром быстрых нейтронов РБН-А1 – измеряют выход нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(d,n){}^8\text{Be}$.

Недавно для измерения потока эпитепловых нейтронов стали разрабатывать активационные датчики с использованием реакции ${}^{71}\text{Ga}(n,\gamma){}^{72}\text{Ga}$ [72–77]. Галлий помещают внутрь замедлителя, и оптимизацией формы и размера замедлителя добиваются того, чтобы чувствительность датчика к эпитепловым нейтронам была близка к постоянной, а к тепловым и быстрым нейтронам – в несколько раз меньшей.

Ранее сделанное утверждение о том, что никто не измерял выход нейтронов из литиевой мишени, разработанной для БНЗТ, верно в том, что выход нейтронов не измеряли из вращающейся литиевой мишени, установленной в госпитале Университета Хельсинки (Финляндия) [51], из жидких литиевых мишеней, разработанных в Израиле [33] и в Токийском технологическом институте (Япония) [78], из твердых стационарных литиевых мишеней, установленных в Национальном онкологическом центре (Токио, Япония) [36–39] и в БНЗТ центре Гуманитарной больницы (Сямынь, Китай) [44]. Обратим внимание на то, что перечисленные стационарные мишени уже используют для проведения клинических испытаний, вращающаяся мишень ожидается в скором времени будет использована для проведения клинических испытаний.

Если рассматривать не только литиевые мишени, разработанные для БНЗТ, но и другие мишени с литием, то несколько измерений выхода нейтронов было проведено [79–81].

В работе, выполненной в Национальной лаборатории Беркли (США) и описанной в статье [79], литиевая мишень представляла собой медную подложку толщиной 0,635 см, присоединенную к шибберу, на которую в вакууме напылен слой природного лития толщиной 100 мкм диаметром 7,62 см. Транспортировку литиевой мишени от стенда напыления до циклотрона осуществляли с закрытым шиббером в атмосфере аргона для предотвращения окисления лития. На установке шиббер открыли на вакуум, и литиевую мишень облучили пучком ионов H_2^+ с током 5 мкА и энергией 5 МэВ (эквивалентно пучку протонов с током 10 мкА и энергией 2,5 МэВ). Поскольку нейтроны генерируют в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, то активация мишени радиоактивным изотопом ${}^7\text{Be}$ дает прямой метод измерения количества произведенных нейтронов (метод возбуждения искусственной радиоактивности). Активация мишени измерена HPGe γ -спектрометром через медную подложку мишени, и в статье приведено значение количества нейтронов, произведенных за время чуть более 1 ч; оно равно $1,87 \cdot 10^{13}$. В статье не обсуждается, соответствует ли это расчетному значению. Далее в статье

внимание уделено измерению спектра нейтронов активационными фольгами (^{187}W , ^{114}In , ^{198}Au , ^{64}Cu , ^{59}Co и ^{56}Mn) и сравнению полученных результатов с расчетными. Измеренная активация фольг отличалась от расчетной от +28,4 % до -57,8 %. Если вернуться к обсуждению измеренного ими выхода нейтронов, то можно сравнить его с расчетным значением, приведенным в статье [58]: $8,83 \cdot 10^{11}$ нейтронов/мКл. За время чуть более 1 ч, согласно расчетным данным, должно произведено чуть более $3,18 \cdot 10^{13}$ нейтронов, что чуть более, чем в 1,7 раз больше измеренного.

Еще одно измерение выхода нейтронов выполнено в Пекинском университете (Пекин, Китай) и описано в статье [80]. Литиевую мишень толщиной 1,2 мм облучали пучком протонов с энергией 1,885 МэВ и установили, что измеренный выход нейтронов в 2 раза меньше расчетного, приведенного в статье [82].

Третье измерение выхода нейтронов проведено в Университете Макмастера (Гамильтон, Канада) [81]. Мишени изготавливали из металлического лития или из соли фторида лития, в которых использовали литий, обогащенный изотопом ^7Li до 99,9 %. Мишени толщиной вплоть до 1 мм изготавливали прессованием, менее 0,1 мм – напылением на медные диски в вакууме. В качестве подложки мишени использовали чашки из меди или алюминия, охлаждаемые водой. Выход нейтронов определяли путем измерения NaI(Tl) γ -спектрометром активации мишени радиоактивным изотопом ^7Be , в нескольких случаях использовали HPGe γ -спектрометр. Было проведено много измерений, в которых изменяли энергию протонов (от 1,89 до 2,5 МэВ), ток протонов (от 0,1 до 28 μA), мишени (литий или фторид лития; медная или алюминиевая чашка). Во всех случаях измеренный выход нейтронов отличался от расчетного [58]: максимально от в 7 раз меньшего до 1,4 раз большего. Наилучшим результатом было отличие в 1,2 раза.

Все эти три измерения выхода нейтронов из литиевой мишени проведены на рубеже столетий – как раз в это время все активнее стали обсуждать возможность создания ускорительных источников для БНЗТ. Во всех работах

измеренный выход нейтронов значительно отличался от расчетного: в одной работе он был в 1,7 раз меньше, в другой – в 2 раза меньше, в третьей – от 7 раз меньше до в 1,4 раза больше. Других работ по измерению выхода нейтронов, сделанных до начала выполнения исследований по теме диссертационной работы, не выявлено.

Обсудим также методы измерения спектра нейтронов.

Для измерения спектра нейтронов применяют различные приборы и методы: механический монохроматор, механический селектор, импульсный ускоритель, кристаллический монохроматор, магнитная нейтронография, измерение энергии образующихся ядер отдачи, детекторы на основе ядерных реакций, полупроводниковые детекторы, активационные фольги, сферы Боннера, пузырьковые детекторы.

Прямым, достоверным и зачастую единственным методом измерения спектра нейтронов, обеспечивающим требуемую точность, является метод времени пролета (времяпролетный) [83, 84]. Энергия нейтрона определяется по времени, которую он затрачивает на пролет определенного фиксированного расстояния. Метод реализуется применением импульсного ускорителя заряженных частиц, обеспечивающего генерацию коротких импульсов нейтронного излучения, или использованием механического монохроматора (механического селектора) при непрерывной генерации нейтронов. Такие установки для проведения точных измерений требуют большой пролетной базы с размещением минимального количества конструкционных материалов вблизи. Примером может служить установка Института ядерной и радиационной безопасности Франции IRSN в Кадараше.

Наиболее часто для оценки спектра нейтронов применяют метод сфер Боннера (метод шаровых замедлителей) [85–88]. Процедура состоит в последовательной установке компактного детектора с высокой чувствительностью к медленным нейтронам внутри полиэтиленовых шаров-замедлителей диаметром от нескольких сантиметров до десятков

сантиметров. Сопоставление скорости счета детектора, полученной с различными шарами-замедлителями, позволяет сделать некоторые заключения о спектре нейтронов, поскольку чувствительность детектора при увеличении диаметра шаров смещается в область быстрых нейтронов. Метод сфер Боннера неудобен тем, что приходится делать измерения несколько раз с разными в диаметре сферами, поддерживая постоянным поток и спектр нейтронов. Этого недостатка нет в спектрометре с единственной сферой, но с множеством детекторов, размещенных внутри сферы в разных местах [89].

Активационные фольги активно используют для оценки энергетического спектра нейтронов, поскольку возникающая активность под действием монохроматических нейтронов пропорциональна потоку нейтронов. Метод основан на существовании нейтронных резонансов – резкого увеличения (в $10 - 10^5$ раз) поглощения нейтронов вблизи определенных энергий. Поскольку реальные нейтронные потоки немонохроматичны и имеют широкий разброс по энергиям, активационный детектор выдает лишь интегральную характеристику, зависящую не только от энергетического распределения нейтронов, но и от энергетического хода сечения активации. Несмотря на то, что активационную спектрометрию рекомендуют для определения параметров эпитепловых нейтронных пучков [90–92], практическая реализация метода, проведенного на ускорительном источнике нейтронов ВИТА, показала, что, если не делать предположений о форме спектра нейтронов, то измерить его невозможно. Дело в том, что спектр нейтронов, требуемый для БНЗТ, смещен к правой границе эпитеплового диапазона энергий (~ 10 кэВ), а резонансы с наибольшим сечением радиационного захвата нейтронов для многих фольг (In, Au, Ag) – к левой границе диапазона энергий (несколько электрон-вольт). Получается, в энергетическом диапазоне, где вероятность захвата нейтрона наибольшая, мало нейтронов, а в диапазоне, где их много, также много резонансов радиационного захвата нейтронов с меньшим сечением. В итоге вклад

в активацию фольг вносят не нейтроны с определенной энергией, а нейтроны практически всего диапазона энергий.

Недавно в рамках прямого поиска темной материи разработан новый нейтронный спектрометр MIMAC-FastN, отличающийся широким диапазоном энергий нейтронов: от 10 кэВ до 600 МэВ [93]. Спектрометр основан на трехмерном обнаружении ядер отдачи и позволяет определять спектральные характеристики и угловое распределение нейтронного поля, открывая возможность получения измерений метрологического качества. Борное покрытие внутри активного объема позволяет использовать спектрометр в качестве активного фантома для БНЗТ.

1.3 Обзор методов определения элементного состава вещества пучками частиц

Известно, что литий – химически активный металл и он мгновенно вступает во взаимодействие с воздухом. Наличие примесей в литиевом слое мишени может значительно уменьшить выход нейтронов из литиевой генерирующей мишени, что повлияет на возможность применения данной мишени в различных, порой жизненно важных, областях.

Для элементного анализа мишени предпочтительно использовать неразрушающие образец методы [94, 95], поскольку это дает возможность дальнейшей работы с мишенью. Ограничим область обзора методами, использующими пучки электронов, фотонов и ионов.

Перечислим наиболее распространенные методы определения элементного состава мишени: Оже-электронная спектроскопия (от англ. Auger Electron Spectroscopy – AES), спектроскопия электронных потерь (от англ. Electron Energy Loss Spectroscopy – EELS), вторично-ионная масс-спектроскопия (от англ. Secondary Ion Mass Spectroscopy – SIMS), резерфордовское обратное рассеяние

(от англ. Rutherford Backscattering Spectrometry – RBS), спектроскопия атомов отдачи, вылетающих вперед (от англ. Elastic Recoil Detection Analysis – ERDA), анализ выхода ядерных реакций (от англ. Nuclear Reaction Analysis – NRA), анализ выхода рентгеновского излучения, возбужденного быстрыми ионами (от англ. Particle Induced X-ray Emission – PIXE), рентгеновская флуоресцентная спектроскопия полного отражения (от англ. Total Reflection X-ray Fluorescence Analysis – TXRF), рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия (от англ. X-Ray Photoelectron Spectroscopy – XPS).

Перечисленные методы отличаются в первую очередь составом первичного пучка. Разделим их на 3 условные группы согласно сорту частиц в пучке: электроны, фотоны, ионы соответственно.

Для использования Оже-электронной спектроскопии [96, 97] и спектроскопии электронных потерь [98] необходим электронный пучок. Проникновение электронного пучка в данных методах происходит на глубину менее 100 нм, что недостаточно для детального изучения распределения концентрации элементов по глубине мишени, но применимо для анализа приповерхностного слоя. Несомненное преимущество указанных методов в том, что они позволяют опознать все элементы тяжелее гелия.

Рентгеновская флуоресцентная спектроскопия полного отражения и рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия, а также другие разновидности данного метода используют фотонный пучок в основном рентгеновского спектра [96]. Данные методы определяют состав приповерхностного слоя толщиной ~ 1 нм. При применении TXRF невозможно определить наличие в мишени легких элементов ($Z < 14$), XPS более универсален.

Третья группа методов использует в качестве первичного ионный пучок, в нее входят вторично-ионная масс-спектроскопия [99], резерфордовское обратное рассеяние [99], спектроскопия атомов отдачи, вылетающих вперед, анализ выхода ядерных реакций, анализ выхода рентгеновского излучения, возбужденного быстрыми ионами и другие [100]. Часть методов используют для

изучения распределения элементов по глубине вплоть до 100 мкм, что является несомненным преимуществом в исследовании элементного состава мишени. Также можно подобрать методы для регистрации как легких, так и тяжелых элементов.

Ниже приведена таблица 2, обобщающая упомянутые методы с основными характеристиками.

Таблица 2 – Характеристики основных методов определения элементного состава образца. I_0 – сорт частиц первичного пучка; I_1 – регистрируемый сорт частиц; A – элементы, которые возможно определить с помощью данного метода; d – толщина анализируемого слоя; P – предел чувствительности метода

Метод	I_0	I_1	A	d	P , ат.%
AES	электроны (3–10 кэВ)	Оже-электроны	$Z > 2$	2 – 6 монослоев	10^{-1}
EELS	электроны (1–1000 кэВ)	электроны	$Z > 2$	< 100 нм	10^{-1}
ERDA	$\text{He}^+ - \text{Au}^+$	атомы отдачи	с малым Z	< 1 мкм	10^{-2}
NRA	$\text{H}^+, \text{D}^+, \text{He}^+$	H^+, He^+	с малым Z	~ 100 нм	10^{-3}
PIXE	H^+, He^+	γ -кванты	$Z > 13$	< 10 мкм	10^{-4}
RBS	$\text{H}_0^+, \text{He}_0^+$	$\text{H}_0^+, \text{He}_0^+$	$Z > 2$	~ 10 мкм	10^{-3}
SIMS	Ar^+, Ga^+	вторичные ионы	Все	1–2 монослоя	10^{-6}
TXRF	Рентгеновские фотоны	γ -кванты	$Z > 14$	1 монослой	10^{-4}
XPS	Рентгеновские фотоны	электроны	$Z > 2$	1–2 монослоя	10^{-1}

Все эксперименты, описанные в главах 2–4, проведены на ускорительном источнике нейтронов VITA в ИЯФ СО РАН с литиевой мишенью. Установка обеспечивает пучок протонов или дейтронов с энергией от 0,3 до 2,3 МэВ с монохроматичностью 0,1 % и током до 10 мА со стабильностью 0,4 %. Исходя

из этого выберем подходящие методы исследования состава мишени из третьей группы. Из таблицы 2 видно, что подходят методы анализа выхода ядерных реакций, анализа выхода рентгеновского излучения, возбужденного быстрыми ионами, и Резерфордовского обратного рассеяния. Далее учтем, что литий легкий элемент, а также отдадим предпочтение *in situ* методам. Таким образом, выбор сокращается до двух методов: анализа выхода ядерных реакций и Резерфордовского обратного рассеяния, рассмотрим их ниже подробно.

Резерфордовское обратное рассеяние.

Водородный, дейтериевый или гелиевый пучок ионов с энергией ~ 1 МэВ при попадании на образец вступает в упругое и неупругое взаимодействие с атомами мишени. В случае упругого взаимодействия налетающий пучок отражается с частичной потерей кинетической энергии за счет кулоновского взаимодействия с атомами мишени, величина потери энергии характеризуется атомной массой элементов мишени, углом рассеяния и глубиной залегания элемента (рисунок 1). Регистрация и анализ данных обратно отраженных ионов называется методом Резерфордовского обратного рассеяния [101].

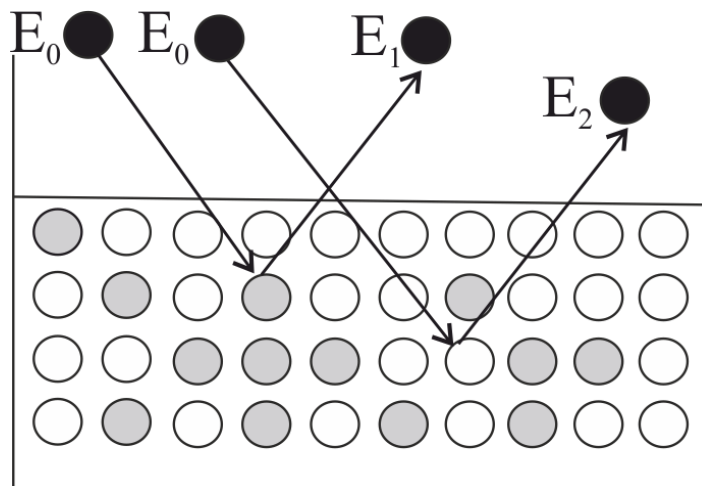


Рисунок 1 – Схема упругого столкновения налетающей частицы с атомами мишени

Величину потери энергии налетающей частицы в случае упругого взаимодействия с веществом рассчитывают теоретически, это позволяет построить модель процесса и определить элементный состав образца, распределение примесей по глубине и концентрацию элементов [96]. Обозначим отношение энергии налетающей частицы после взаимодействия (E_1) к ее энергии до взаимодействия (E_0) как кинематический фактор K_M :

$$K_M = \frac{E_1}{E_0}. \quad (1.1)$$

Основываясь на законах сохранения энергии и импульса, геометрии эксперимента, учитывая, что масса налетающей частицы меньше атомной массы мишени ($M_1 < M_2$), получим следующее выражение:

$$K_M = \left[\frac{(M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cos \theta}{M_1 + M_2} \right]^2 = \left\{ \frac{\left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \right)^2 \sin^2 \theta \right]^{1/2} + \frac{M_1}{M_2} \cos \theta}{1 + \frac{M_1}{M_2}} \right\}^2. \quad (1.2)$$

Видно, что кинематический фактор зависит от массы частиц и угла рассеяния, при этом наименьшее значение K_M принимает при $\theta = 180^\circ$. При отражении от разных элементов, находящихся на одной глубине, частица принимает разное значение энергии. Лучшее разрешение по массе элементов мишени достигается при условии, что изменение кинематического фактора для этих элементов максимально при фиксированной массе налетающей частицы (M_1). Такое условие выполняется при $\theta = 180^\circ$, следовательно, углы, наиболее предпочтительные для установки детектора, близки к 180° .

Помимо качественного анализа метод Резерфордского обратного рассеяния позволяет провести также и количественный анализ, при котором учитываются такие параметры, как сечение рассеяния, энергетические потери и

другие. Определим дифференциальное сечение рассеяния $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)$ через полное число частиц (Q), падающих на мишень, и через число частиц, зарегистрированных детектором (dB):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{Nt} \left(\frac{dB}{d\Omega} \frac{1}{Q} \right), \quad (1.3)$$

где N – атомная плотность мишени, t – толщина мишени.

Телесный угол Ω обычно является малой величиной, угол рассеяния известен, тогда полное сечение рассеяния (σ) (при $\Omega \rightarrow 0$, $\sigma\Delta\Omega \rightarrow d\sigma/d\Omega$) определяется следующим образом:

$$\sigma = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega. \quad (1.4)$$

Используя формулу Резерфорда, определим дифференциальное сечение рассеяния в лабораторной системе отсчета:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{16\pi\epsilon_0 E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4\theta} \frac{\left\{ \left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \sin\theta \right)^2 \right]^{1/2} + \cos\theta \right\}^2}{\left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \sin\theta \right)^2 \right]^{1/2}}, \quad (1.5)$$

где Z_1 , Z_2 – атомные номера налетающей частицы и атома мишени соответственно, E – энергия частицы в мишени под рассеянием, e – заряд электрона, ϵ_0 – электрическая постоянная ($8,854 \cdot 10^{-12}$ Ф/м).

Формула (1.5) показывает характер зависимости сечения от атомного номера частиц и энергии. Видно, что рассеяние происходит эффективнее на более тяжелых частицах, а выход рассеянных частиц увеличивается с уменьшением энергии налетающей частицы.

Налетающая частица до и после рассеяния на атоме мишени теряет часть своей энергии при прохождении через вещество. Определим энергию частицы после прохождения толщины z в веществе:

$$E(z) = E_0 - \int_0^z \frac{dE}{dz} dz . \quad (1.6)$$

Тогда коэффициент пропорциональности между потерями энергии и слоевой концентрацией атомов равен:

$$\varepsilon = \frac{1}{N} \frac{dE}{dz} . \quad (1.7)$$

В случае, когда мишень состоит из нескольких элементов, необходимо учитывать их концентрации, данный принцип известен как правило Брэгга:

$$\varepsilon^{\text{обр}} = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{N} \varepsilon_i, \quad (1.8)$$

где $\varepsilon^{\text{обр}}$ – сечение торможения образца, N_i – концентрация атомов сорта i , входящих в состав образца, N – суммарная концентрация атомов, ε_i – сечение торможения атомов сорта i .

Определим изменение энергии налетающей частицы до рассеяния на атоме мишени и после:

$$\Delta E = K_M E_0 - E_1 = \left[\frac{K_M}{\cos \theta_1} \frac{dE}{dz} \Big|_{\text{вх}} + \frac{1}{\cos \theta_2} \frac{dE}{dz} \Big|_{\text{вых}} \right] z, \quad (1.9)$$

где $K_M E_0$ – энергия частиц, рассеянных на находящихся на поверхности атомах, E_1 – энергия, зависящая от глубины рассеяния z , θ_1 – угол между нормалью к мишени и направлением падения, θ_2 – угол между нормалью к образцу и направлением движения частицы после рассеяния в мишени.

Для удобства введем следующие обозначения:

$$\Delta E = [\varepsilon]_{\text{эле}}^{\text{обр}} N z, \quad (1.10)$$

где верхний индекс $[\varepsilon]_{\text{эле}}^{\text{обр}}$ обозначает тормозящую среду, а нижний – атом, на котором происходит рассеяние.

$$[\varepsilon]_{\text{эле}}^{\text{обр}} = \frac{K_M}{\cos\theta_1} \varepsilon^{\text{обр}} \Big|_{E_{\text{вх}}} + \frac{1}{\cos\theta_2} \varepsilon^{\text{обр}} \Big|_{E_{\text{вых}}} . \quad (1.11)$$

Используя зависимость величин ΔE и z , можно определить глубину залегания атома образца, на котором произошло рассеяние налетающей частицы, в том числе и в единицах концентрации (ат/см²).

In situ метод Резерфордского обратного рассеяния не разрушает образец и обладает высокой точностью. Максимальная толщина слоя для анализа определяется энергией и массой иона пучка, а также элементным составом мишени, и составляет ~ 10 мкм [102]. Метод позволяет определить любой элемент, за исключением водорода и гелия.

Анализ выхода ядерных реакций.

Для анализа легких элементов также часто используют пучки нейтронов или легких ионов в энергетическом диапазоне от ~ 1 МэВ до ~ 10 МэВ. В данном случае атом мишени (А) вступает в ядерную реакцию $A(a,b)B$ с налетающей частицей (а), в результате преобразовываясь в радиоактивный нуклид, который распадается на другой атом (В) и частицу (b). Число образовавшихся частиц b определяется количеством атомов А в мишени, что дает возможность определить их концентрацию в мишени. В случае, когда наведенная радиоактивность регистрируется после облучения, метод называется активационным анализом; если излучение регистрируется непосредственно во время эксперимента, метод называется мгновенно радиационным анализом [103].

Анализ выхода ядерных реакций является одним из самых распространенных в сравнении с другими методами анализа ядерных реакций. В качестве налетающего пучка используют ионы водорода или гелия, реже пучок дейтронов, а регистрируют образовавшиеся ионы, чаще всего это протоны и α -частицы.

Вероятность пути ядерной реакции $A(a,b)B$ определяется сечением взаимодействия, энергией налетающей частицы и типами атомов пучка и мишени.

Известно, что продукты неупругих ядерных реакций в ряде случаев обладают энергией, в несколько раз превышающей энергию падающих частиц, что позволяет при измерении легко отделить их сигналы от общего фона спектра.

Анализ результатов усложняется тем, что сечения неупругих ядерных реакций определяются только экспериментально, некоторые сечения обладают яркими характерными резонансами, которые можно использовать для калибровки экспериментальной установки по энергии [96]. Так как сечения ядерных реакций в основном гораздо ниже сечений упругих взаимодействий, то при одном и том же токе ионов в случае анализа выхода ядерных реакций время набора статистики может существенно возрасти. С другой стороны, можно увеличить ток ионов с учетом предельной плотности мощности потока ионов для мишени.

Есть два подхода в проведении измерений в зависимости от характера сечения изучаемой реакции. В случае медленно меняющегося сечения анализируемый спектр набирается при постоянной энергии ионного пучка, в случае наличия в сечении яркого резонанса измеренный спектр непосредственно отображает распределение элемента по глубине как зависимость выхода ядерных реакций от энергии налетающего пучка. Если ядерная реакция идет с образованием двух частиц, то их кинематику можно рассчитать через законы сохранения импульса и энергии и однозначно предсказать энергию образовавшихся частиц, о количестве испущенных частиц можно судить по интенсивности пика на определенной ранее энергии.

Основное преимущество метода анализа выхода ядерных реакций заключается в том, что он позволяет определять концентрации элементов как в глубине, так и в приповерхностном слое, в отличие от многих других методов.

На ускорительном источнике нейтронов ИЯФ СО РАН генерируется стабильный моноэнергетичный пучок протонов или дейтронов, это дает возможность использовать такие методы определения элементного состава вещества, как резерфордовское обратное рассеяние, анализ выхода ядерных реакций, спектроскопия атомов отдачи, вылетающих вперед, и анализ выхода

рентгеновского излучения, возбужденного быстрыми ионами. В данной работе для определения состава литиевой нейтроногенерирующей мишени использовалась комбинация *in situ* методов резерфордовского обратного рассеяния и анализа выхода ядерных реакций, которая ниже обозначается как спектроскопия ионного рассеяния. Методы выбраны, основываясь на их положительных характеристиках, таких как большая точность измерения, возможность определения элементного состава образца *in situ*, распознавание легких элементов с $Z > 2$, в том числе изотопы лития, что, безусловно, важно для исследования.

1.4 Обзор методов измерения сечения ядерной реакции

Величину, характеризующую вероятность взаимодействия элементарной частицы с атомным ядром, называют сечением ядерной реакции (эффективным сечением). Знание эффективного сечения позволяет определить скорость ядерной реакции или количество прореагировавших частиц. За единицу сечения принята величина 1 барн = 10^{-24} см².

Обычно измерение сечения ядерной реакции проводят следующим образом. На ускорителе заряженных частиц получают пучок элементарных частиц (протонов, дейтронов, ионов гелия и т.д.) с фиксированной энергией и направляют его на мишень, измеряя ток частиц. Продукты реакции регистрируют детектором, расположенным на некотором расстоянии от мишени и под некоторым углом от направления пучка.

Если продуктом реакции является γ -квант, то для его регистрации обычно используют сцинтилляционный или полупроводниковый γ -спектрометр. Сцинтилляционный γ -спектрометр состоит из сцинтиллятора и фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). В сцинтилляторе под действием электронов, создаваемых γ -квантами, возникает кратковременная вспышка света – сцинтилляция,

преобразуемая в ФЭУ в электрический импульс, амплитуда которого пропорциональна энергии γ -кванта. В полупроводниковом γ -спектрометре γ -кванты обычно регистрируются в монокристалле германия. Электроны, образуемые γ -квантами, производят электронно-дырочные пары, которые под действием приложенного электрического поля создают импульс тока, амплитуда которого пропорциональна энергии электрона.

Если продуктом реакции является протон, α -частица или другая заряженная частица, то для регистрации обычно используют полупроводниковый или магнитный α -спектрометр. Действие полупроводникового α -спектрометра аналогично действию полупроводникового γ -спектрометра. В магнитном α -спектрометре заряженные частицы с разной скоростью в магнитном поле двигаются по разным траекториям (имеют разный ларморовский радиус) и регистрируются разными датчиками тока (цилиндрами Фарадея).

Если продуктом реакции является нейтрон, то для измерения сечения реакции регистрируют либо другой сопутствующий продукт реакции (γ -квант, α -частицу), либо продукты реакции последующего распада образующегося ядра, либо продукты реакции последующего взаимодействия нейтрона, например α -частицу реакции $^{12}\text{C}(n, \alpha_0)^9\text{Be}$ в спектрометрическом радиометре быстрых нейтронов с алмазным детектором.

Измеренные сечения ядерных реакций, приведенные в научных статьях и в базах данных ядерных реакций, зачастую значительно отличаются друг от друга у разных авторов. Данный факт указывает на сложность измерения сечения ядерных реакций, в основном, на сложность достоверного определения толщины исследуемой мишени, на сложность определения содержания в мишени примесей, влияющих на скорость торможения элементарных частиц, а также на необходимость измерения углового распределения излучения.

1.5 Выводы

В настоящее время в большинстве проектов ускорительных источников нейтронов, разрабатываемых для БНЗТ, используют литиевую мишень для генерации нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$.

Для измерения выхода нейтронов из литиевой мишени решено использовать метод возбуждения искусственной радиоактивности, поскольку продуктом реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ являются радиоактивное атомное ядро бериллий-7 и измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер ${}^7\text{Be}$, которое равно количеству сгенерированных нейтронов.

Для определения состава литиевой нейтроногенерирующей мишени решено использовать комбинацию *in situ* методов резерфордовского обратного рассеяния и анализа выхода ядерных реакций, которая обозначается как метод спектроскопии ионного рассеяния.

Для измерения сечения ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ решено использовать полупроводниковый α -спектрометр и уделить особое внимание достоверному определению толщины лития и содержания в нем примесей, влияющих на скорость торможения протонов.

Глава 2. Измерение выхода нейтронов из литиевой мишени

В Главе 2 приведены результаты измерения выхода нейтронов из литиевой мишени, созданной и используемой для БНЗТ и других приложений.

2.1 Экспериментальная установка

В ИЯФ СО РАН предложен и создан [25] ускорительный источник нейтронов ВИТА, включающий в себя i) тандемный электростатический ускоритель заряженных частиц оригинальной конструкции (ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией) для получения моноэнергетичного пучка протонов или дейтронов энергией до 2,3 МэВ, током до 10 мА, ii) тонкую литиевую мишень для генерации мощного потока нейтронов в реакциях ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и $\text{Li}(d,n)$, iii) ряд систем формирования пучка нейтронов для получения пучка холодных, тепловых, эпитепловых или быстрых нейтронов. Установка оснащена γ -, α - и нейтронными спектрометрами и дозиметрами. Схема экспериментальной установки приведена на рисунке 2.

Установку используют для разработки методики бор-нейтронозахватной терапии, включая изучение влияния нейтронного излучения на клеточные культуры и лабораторных животных [104–106], разработку средств дозиметрии [60–62, 76, 107–108], тестирование новых препаратов адресной доставки бора [109–116], лечение домашних питомцев со спонтанными опухолями [11, 12], для разработки методики литий-нейтронозахватной терапии [117], для детального изучения радиационного блистеринга при имплантации протонов [118]. Установку также применяют для измерения сечения ядерных реакций [119], для радиационного тестирования материалов Международного термоядерного

реактора ИТЭР (Кадараш, Франция) [120–122] и Большого адронного коллайдера ЦЕРН (Женева, Швейцария) [123] и для ряда других приложений.

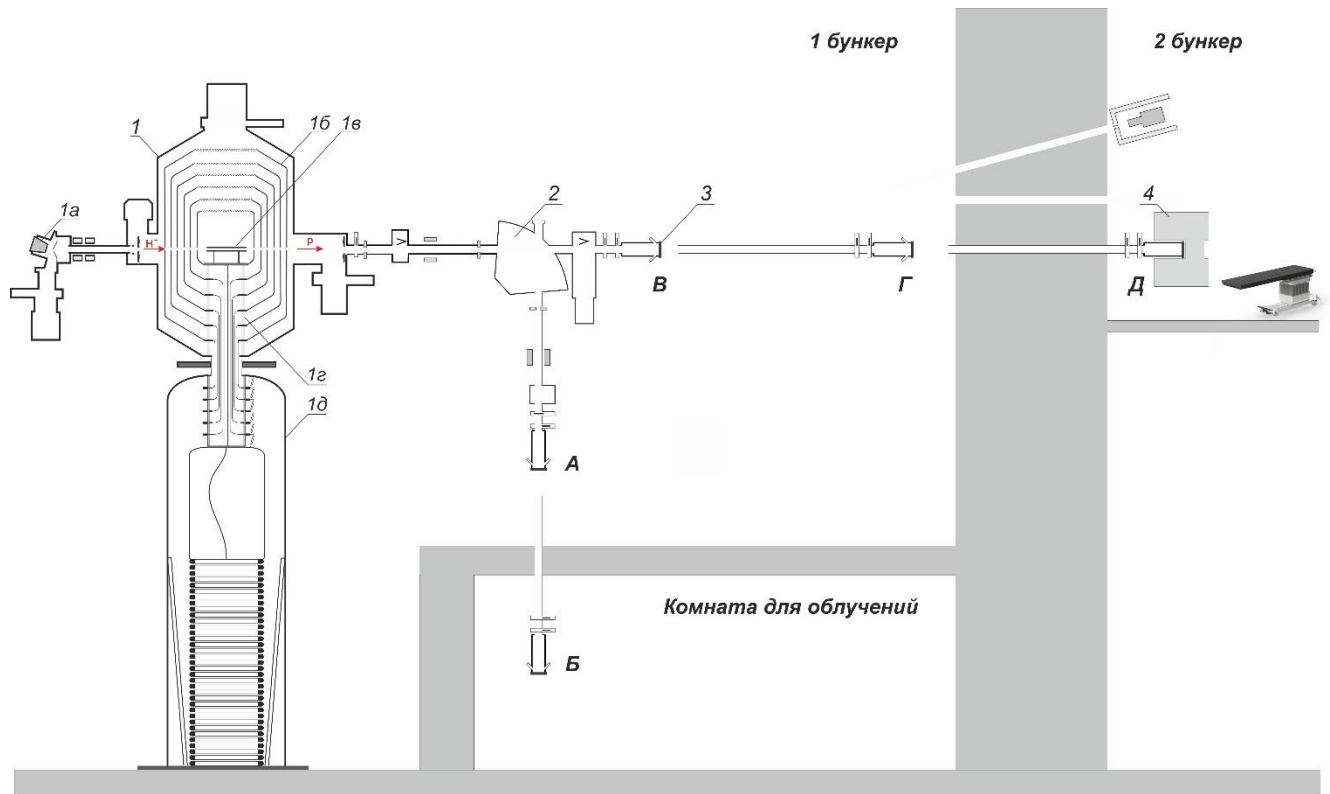


Рисунок 2 – Схема ускорительного источника эпитепловых нейтронов: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией (1а – источник отрицательных ионов водорода, 1б – высоковольтный и промежуточные электроды, 1в – газовая обдирочная мишень, 1г – проходной изолятор, 1д – высоковольтный источник питания), 2 – поворотный магнит, 3 – литиевая нейтроногенерирующая мишень, 4 – система формирования пучка нейтронов. Литиевую мишень размещают в положениях А, Б, В, Г или Д

Литиевая мишень представляет собой медный диск диаметром 144 мм толщиной 8 мм. На одну сторону диска по центру в круге диаметром 84 мм наносят визуально однородный слой лития кристаллической плотности со средней толщиной обычно от 60 до 100 мкм. С обратной стороны медного диска внутри диаметра 122 мм сделаны спиралевидные каналы для охлаждения водой; эту сторону медного диска прижимают алюминиевым диском толщиной 16,5 мм.

Литиевая мишень интегрирована в мишенный узел, оснащенный шибером и окнами для наблюдения за поверхностью мишени.

Нанесение слоя лития на мишень проводят на отдельном стенде методом термического напыления в вакууме. Литий хранят в закрытых ампулах в аргоновой среде в перчаточном боксе MB-200MOD (MBRAUN, Германия). Перед напылением литий достают из ампулы, отвешивают необходимое количество, достают из перчаточного бокса через шлюз на воздух и помещают на нагревательную тарелку стенда напыления. Затем на стенд напыления устанавливают мишенный узел, открывают шибер, включают вакуумную откачку, двигают нагревательную тарелку к мишени и включают нагреватель. Нагрев приводит к испарению лития и его нанесению на медную подложку мишени, охлаждаемую воздухом. Затем нагреватель выключают, тарелку отодвигают и возвращают в исходное положение, шибер закрывают. После этого мишенный узел снимают со стенда напыления, с сохранением вакуума внутри переносят на ускорительный источник нейтронов и подсоединяют к нему. Подробное описание тонкой литиевой мишени и процедуры напыления слоя лития приведено далее в § 3.1.

При изучении последних данных о бор-нейтронозахватной терапии [26] обнаружено, что никто ранее не измерял выход нейтронов из литиевой мишени, разработанной для БНЗТ. Для оценки выхода нейтронов проводят расчеты, в которых используют данные об измеренном сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, которые у разных авторов согласуются между собой при энергии протонов, близкой к пороговой, и расходятся при повышении энергии протонов [124]. В данной работе при сравнении результатов измеренного выхода нейтронов с расчетным использовали расчетные данные, приведенные в работе [58].

Для измерения выхода нейтронов использован тот факт, что продуктом реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ являются не только нейтрон, но и радиоактивное атомное ядро бериллий-7, которое в результате электронного захвата превращается обратно в литий-7 с периодом полураспада 53,22 сут. В 10,3 % случаев распад

сопровождается испусканием 478 кэВ фотона. Если не допустить распространение бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер ${}^7\text{Be}$, которое равно количеству сгенерированных нейтронов.

При проведении исследований использовано 13 мишеней, размещаемых на установке в положениях *A* или *B* (см. рисунок 2). Сначала мишень облучают пучком протонов, обычно в течение 1 ч при токе 1 мА, а на следующий день активацию мишени измеряют γ -спектрометром. Для этого мишенный узел разбирают, вынимают из него собственно литиевую мишень, помещают ее в прозрачный, герметичный пакет, размещают на расстоянии 1854 мм от входного окна спектрометра и измеряют ее активность. Также измеряют активность мишенного узла, чтобы определить количество бериллия, перенесенного с мишени.

В качестве γ -спектрометра используют спектрометр γ -излучения СЕГ-1КП (Институт физико-технических проблем, Дубна) на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия (HPGe γ -спектрометр) [125]. Энергетическое разрешение детектора HPGe γ -спектрометра составляет 1,4 кэВ для линии 122 кэВ (${}^{57}\text{Co}$) и 3,5 кэВ для линии 1332 кэВ (${}^{60}\text{Co}$).

2.2 Калибровка γ -спектрометра

Калибровка по энергии и эффективности регистрации детектора HPGe γ -спектрометра осуществлена двумя мощными источниками фотонного излучения: источником γ -излучения с радионуклидом цезий-137 типа ИГИ-Ц-3-1 (ПО «Маяк», Озерск, Челябинская обл.), источником γ -излучения GBa3.11 на основе радионуклида барий-133 (АО «РИТВЕРЦ», Санкт-Петербург), семью точечными эталонными радионуклидными источниками фотонного излучения

из набора ОСГИ-РТ (АО «РИТВЕРЦ», Санкт-Петербург): ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{54}Mn , ^{152}Eu , ^{207}Bi , ^{22}Na [126] и тремя слабыми точечными источниками фотонного излучения, изготовленными самостоятельно. Характеристики эталонных источников излучения приведены в таблицах 3, 4.

Таблица 3 – Характеристики радионуклидных источников фотонного излучения

Источник	Номер паспорта	Дата изготовления	Активность на момент создания, Бк	Активность на момент калибровки, Бк	Доверительные границы суммарной погрешности определения активности, %
^{137}Cs	4662	22.11.2006	$6,2 \cdot 10^6$	$4,52 \cdot 10^6$	10
^{133}Ba	4324	20.01.2014	$1,1 \cdot 10^6$	$6,86 \cdot 10^5$	20
^{22}Na	6443/1	22.10.2019	$1,09 \cdot 10^5$	$7,5 \cdot 10^4$	3
^{54}Mn	6443/2	22.10.2019	$1,03 \cdot 10^5$	$3,3 \cdot 10^4$	3
^{60}Co	6443/3	22.10.2019	$9 \cdot 10^4$	$7,48 \cdot 10^4$	3
^{133}Ba	6443/4	22.10.2019	$9,3 \cdot 10^4$	$8,48 \cdot 10^4$	3
^{137}Cs	6443/5	22.10.2019	$1,03 \cdot 10^5$	$9,97 \cdot 10^4$	3
^{152}Eu	6443/6	22.10.2019	$1,09 \cdot 10^5$	$1,01 \cdot 10^5$	3
^{207}Bi	6443/7	22.10.2019	$5,3 \cdot 10^4$	$5,14 \cdot 10^4$	3

Таблица 4 – Энергия линий γ -излучения эталонных радионуклидных источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ

Источник	Энергия линий γ -излучения, кэВ
^{22}Na	1274,5
^{54}Mn	834,8
^{60}Co	1173,2, 1332,5
^{133}Ba	81,0, 276,4, 302,8, 356,0, 383,8
^{137}Cs	661,7
^{152}Eu	121,8, 244,7, 344,3, 411,1, 778,9, 867,4, 964,1, 1085,9, 1112,1, 1408,0
^{207}Bi	569,7, 1063,7, 1770,2

Использование большого количества источников фотонного излучения обусловлено желанием с наибольшей точностью определить HPGe γ -спектрометром эффективность регистрации фотонов с энергией 478 кэВ.

Из таблицы 4 видно, что эталонных радионуклидных источников фотонного излучения с энергией 478 кэВ нет. Поэтому, полагая энергетическую зависимость эффективности регистрации детектора гладкой, можно использовать несколько других источников фотонного излучения с близкой энергией. Очевидным является использование двух мощных источников излучения с радионуклидом цезий-137 и барий-133. Их активность сравнима с активностью измеряемой мишени (точнее, на порядок меньше), и их энергии фотонов близки: 383,8 кэВ у барий-133 и 661 кэВ у цезий-137. Однако, поскольку доверительные границы суммарной погрешности определения активности этих источников излучения значительны по величине (см. таблицу 3), то и определяемая эффективность регистрации фотонов с энергией 478 кэВ будет крайне низкой – на уровне 20 %. Измерение выхода нейтронов с такой точностью, конечно, будет представлять интерес, но хотелось бы определить эффективность регистрации фотонов энергией 478 кэВ точнее. Для достижения этой цели были применены семь точечных эталонных радионуклидных источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ с активностью еще на два порядка меньше и три самостоятельно изготовленных точечных источников фотонного излучения с еще меньшей активностью. Выполнение поставленной задачи калибровки HPGe γ -спектрометра с высокой точностью осуществлено следующим образом.

Источник фотонного излучения 2 закрепляют на пластине из оргстекла, установленной на подвижном управляемом 2D столе 3, придвигают соосно вплотную ко входному окну детектора HPGe γ -спектрометра 1 (детектор и источники имеют форму цилиндров) и проводят измерения (рисунок 3). Далее измерения повторяют, отодвигая источник от детектора с шагом 8 мм, вплоть до расстояния 112 мм.

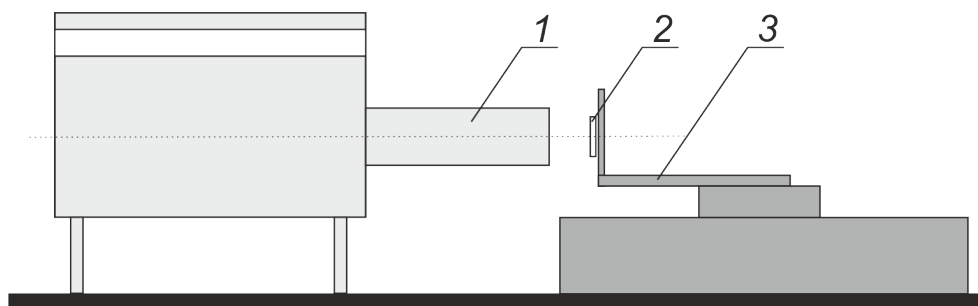


Рисунок 3 – Схема проведения калибровки: 1 – HPGe γ -спектрометра, 2 – один из эталонных радионуклидных источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ, 3 – подвижный управляемый 2D стол с пластиной для закрепления источника фотонного излучения

При измерении используют программное обеспечение RadugaMCA-16K, поставляемое в комплекте с HPGe γ -спектрометром. На рисунке 4 представлен скриншот окна программы при измерении эталонного радионуклидного источника фотонного излучения ^{137}Cs из набора ОСГИ-РТ. Использование панели «Зона интереса (ROI)» обеспечивает отображение информации об интересующем пике. В данном случае в таблице отражены следующие данные: «Центр» – положение (в каналах) центра пика; «Ширина» – полуширина пика (в каналах), определенная при подгонке гауссиана; «Центр (кэВ)» – положение центра пика; «Ширина (кэВ)» – полуширина пика, определенная при подгонке гауссиана; «Пик» – сумма всех отсчетов в пике за вычетом фона; «Фон» – сумма всех отсчетов фона; «Пик+фон» – сумма всех отсчетов между границами зоны; «Ошибка %» – статистическая ошибка; «Chi2» – ошибка (нормированная) подгонки гауссиана; «Интенс.» – количество зарегистрированных импульсов за секунду. Данные о положении центра пика и энергии линии γ -излучения источника фотонного излучения используют для калибровки спектрометра по энергии. Эффективность регистрации определяют делением измеренного количества зарегистрированных импульсов за секунду на активность источника излучения.

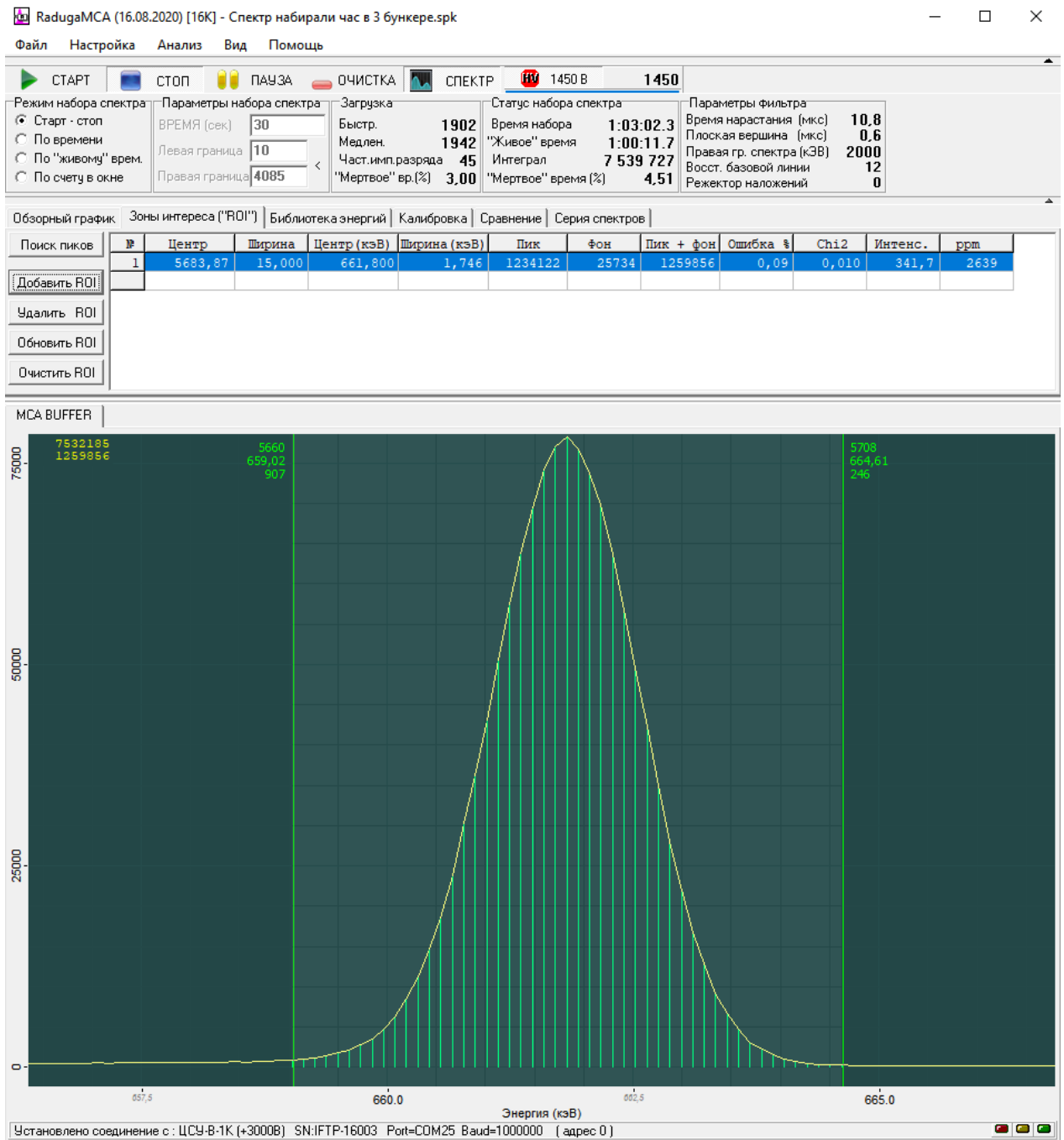


Рисунок 4 – Скриншот окна программного обеспечения RadugaMCA-16K

Обратим внимание на панель «Статус набора спектра», на котором отображаются: «Время набора (сек.)» – реальное (астрономическое) время набора спектра в секундах; «Живое» время» – соответственно «живое» время набора в секундах; «Кол-во импульсов» – количество зарегистрированных событий в спектре; «Мертвое время» – «мертвое» время цифрового спектрометрического устройства (в процентах) за время набора спектра. Здесь «мертвое» время – термин, обозначающий время, в течение которого измерение не проводится (не

может быть проведено); его измеряют и представляют в относительных единицах – в процентах от времени набора спектра.

Измерения проводят для всех семи точечных источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ. В итоге эффективность регистрации детектора по энергии определяют в 23 линиях γ -излучения; соответствия линии излучения и источника приведены в таблице 4 [127].

Результат калибровки по энергии представлен на рисунке 5. Видно, что между каналом измерения и энергией фотонов однозначная линейная зависимость. Полученная точность калибровки по энергии достаточна для достоверной идентификации линии излучения.

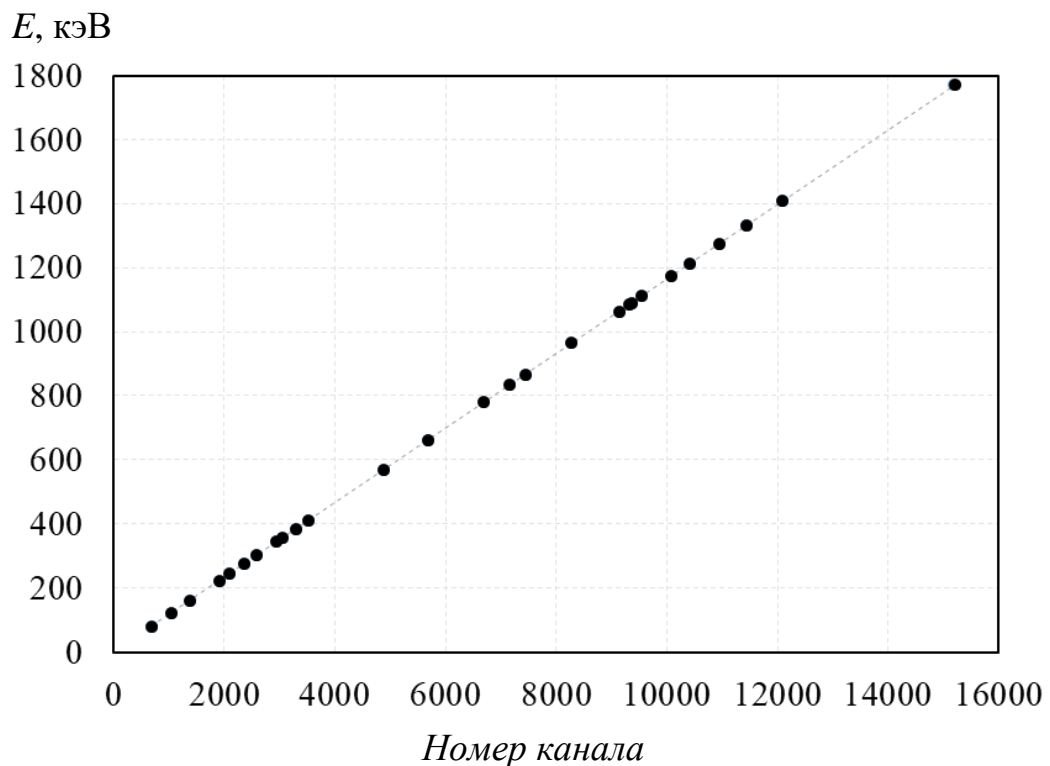


Рисунок 5 – Зависимость энергии линии γ -излучения от номера канала детектора

Результаты измерения энергетической зависимости эффективности регистрации детектора для разных расстояний представлены на рисунке 6.

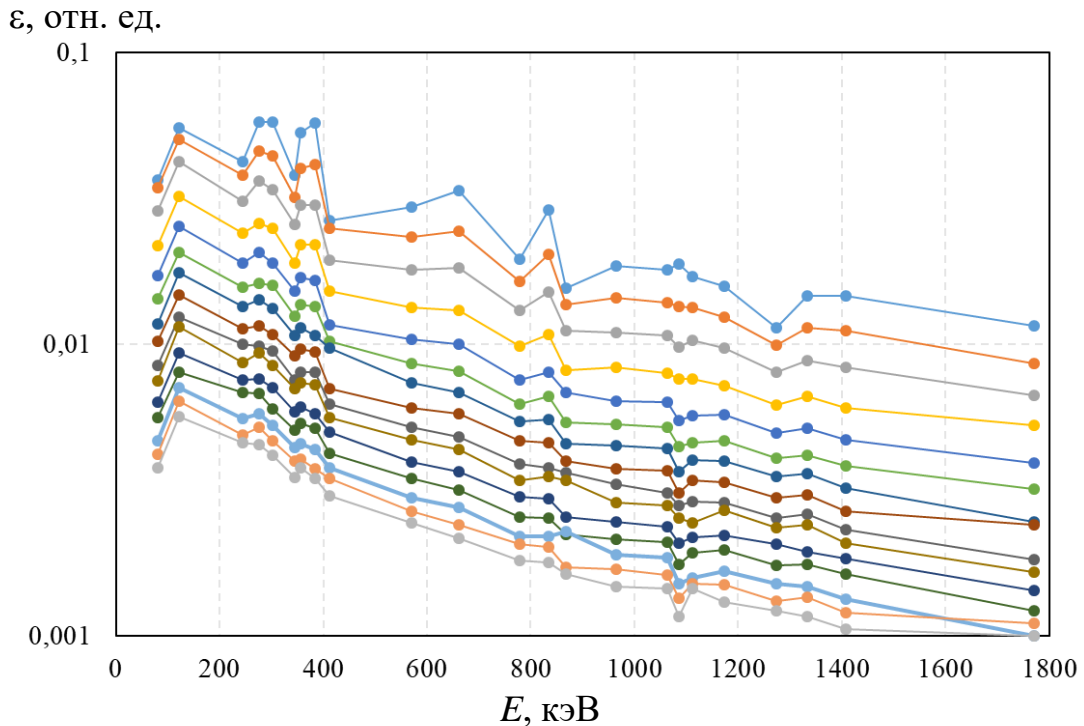


Рисунок 6 – Энергетическая зависимость эффективности регистрации HPGe γ -спектрометра. Сверху вниз: расстояние между источником излучения и входным окном детектора равно 0, далее с шагом 8 мм вплоть до 112 мм

Сделаем предположение о том, что эффективность регистрации ε обратно пропорциональна квадрату расстояния от источника излучения до германиевого кристалла детектора x , и построим графики зависимости $\varepsilon x^2(x)$ (рисунок 7). Здесь $x = x_0 + x_i$, где x_0 – расстояние от поверхности входного окна до германиевого кристалла, в данном случае $x_0 = 33$ мм; x_i – расстояние от поверхности входного окна до источника излучения (от 0 до 112 мм с шагом 8 мм).

Из самого определения функции $\varepsilon x^2(x)$ следовало ожидать, что она будет постоянной, не зависящей от расстояния. Однако на рисунке 7 видно, что, если на больших расстояниях функция $\varepsilon x^2(x)$ постоянна, то при приближении источника излучения к детектору ее значения уменьшаются. Для того, чтобы понять возможную причину такого поведения функции, обратим внимание на зависимость мертвого времени от расстояния; она приведена на рисунке 8.

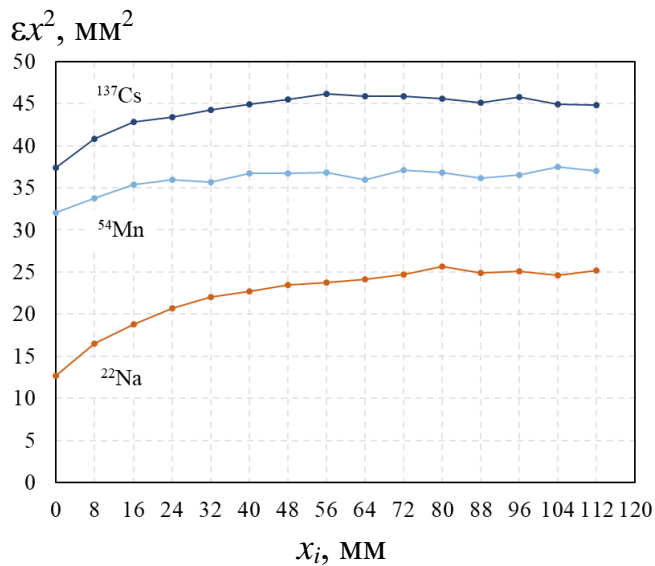
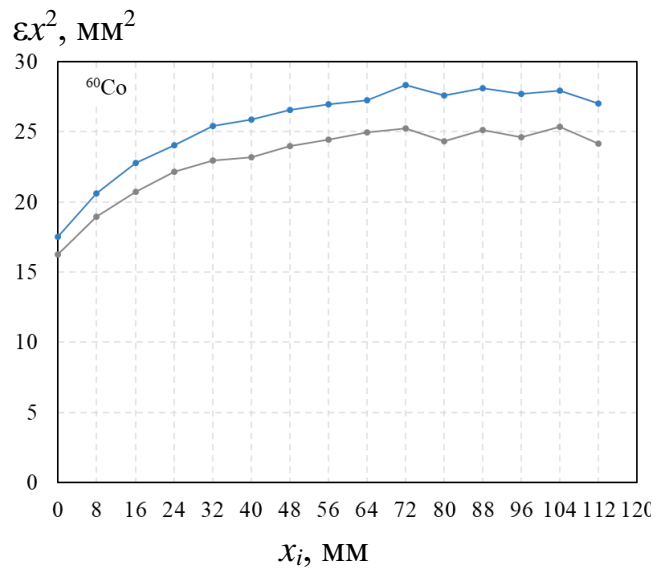
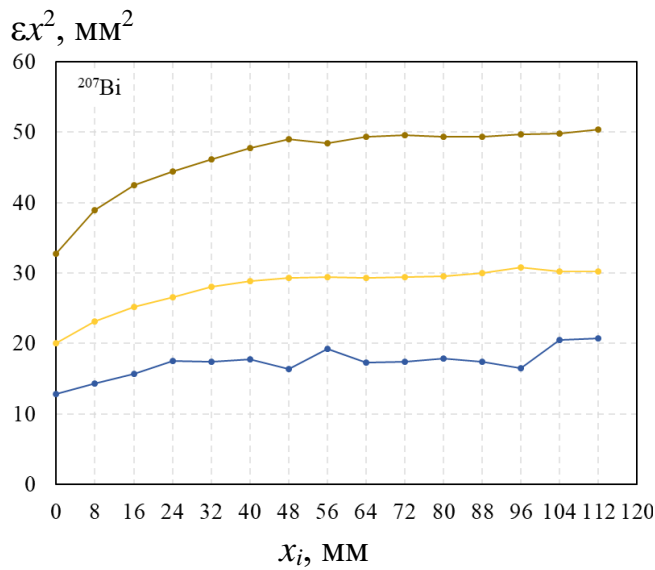
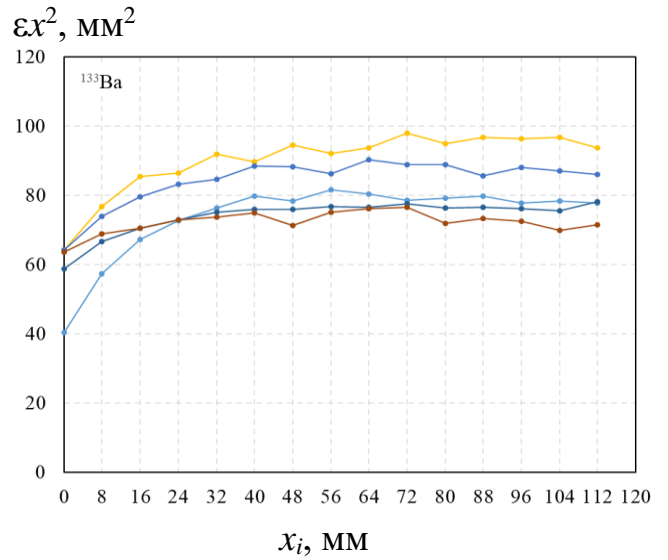
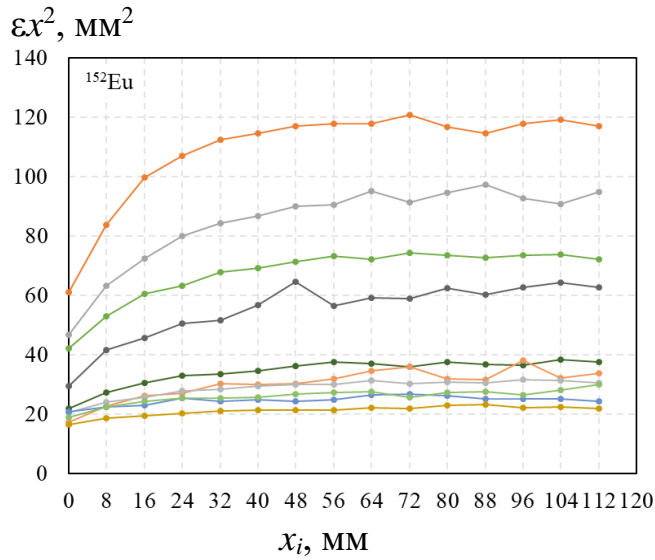


Рисунок 7 – Зависимость $\epsilon\chi^2(x)$, где разные кривые на графиках соответствуют разным линиям излучения изотопа

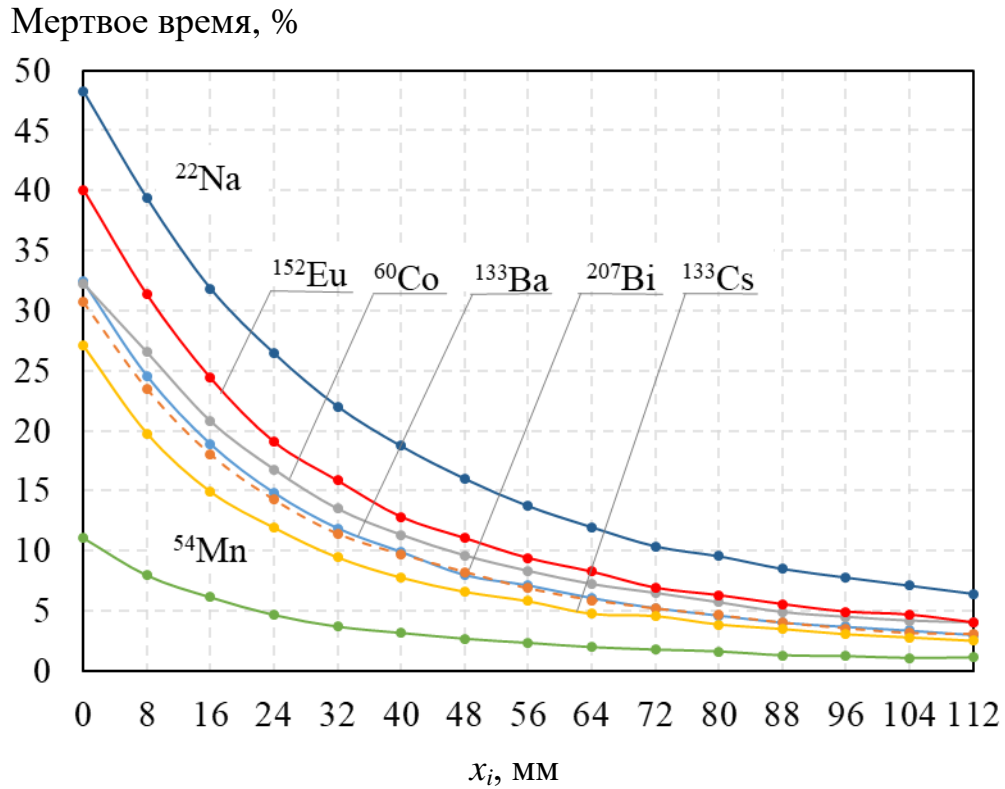


Рисунок 8 – Зависимость мертвого времени детектора от расстояния от входного окна детектора до эталонных радионуклидных источников фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ при измерении интенсивности их излучения

Сравнивая графики на рисунке 7 и рисунке 8, обнаружим, что, чем больше мертвое время, тем меньше значение $\varepsilon x^2(x)$ при прочих равных условиях. Так, при измерении интенсивности излучения источника ^{54}Mn , когда мертвое время детектора не превышало 11 %, функция εx^2 практически постоянна с расстояния 16 мм. В случае измерения интенсивности источников ^{22}Na и ^{152}Eu , когда мертвое время превышало 40 %, функция εx^2 постоянна уже только с расстояния 56 мм. Следовательно, программный модуль детектора не обеспечивает достоверную регистрацию интенсивности излучения в случае большой загрузки (средней частоты следования импульсов).

Будем считать, что измерения, проведенные на расстоянии $x_i \geq 56$ мм, достоверные, и определим средние значения и стандартные отклонения функции εx^2 для всех 23 линий γ -излучения. Затем уточним принятое значение $x_0 = 33$ мм, варьируя x_0 и определяя сумму стандартного отклонения значений функции εx^2

при $x_i \geq 56$ мм. На рисунке 9 приведен график зависимости суммы стандартного отклонения функции εx^2 от величины x_0 . Определив минимум функции, получим $x_0 = 33,27$ мм; далее это значение будем использовать при определении эффективности регистрации.

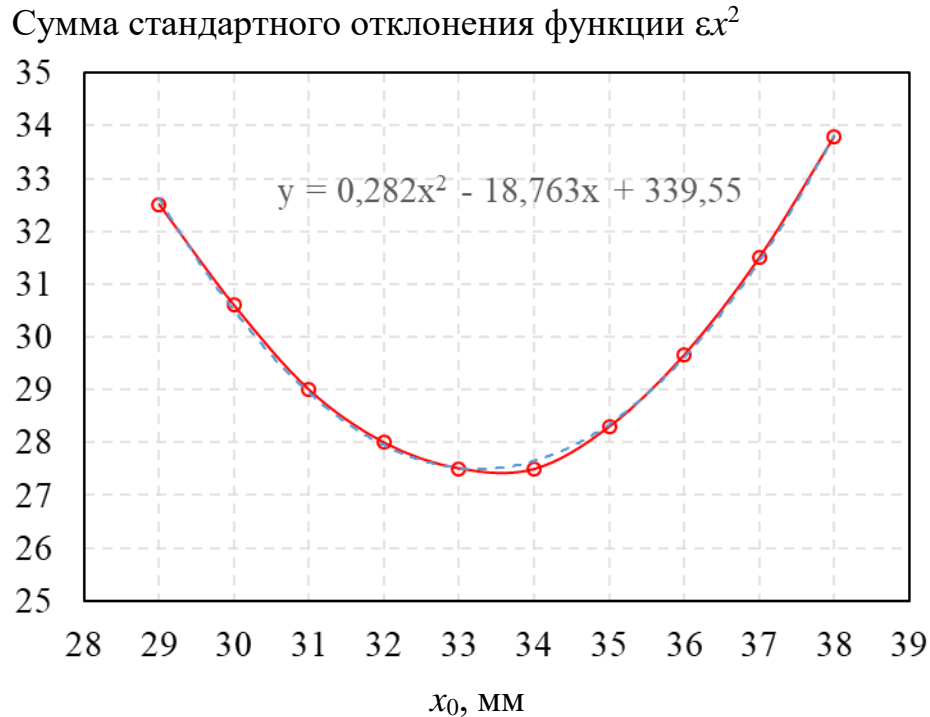


Рисунок 9 – Зависимость суммы стандартного отклонения функции εx^2 от x_0

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

эффективность регистрации для измерения активации литиевой мишени радиоактивным изотопом бериллий-7 в результате реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ при ее облучении пучком протонов.

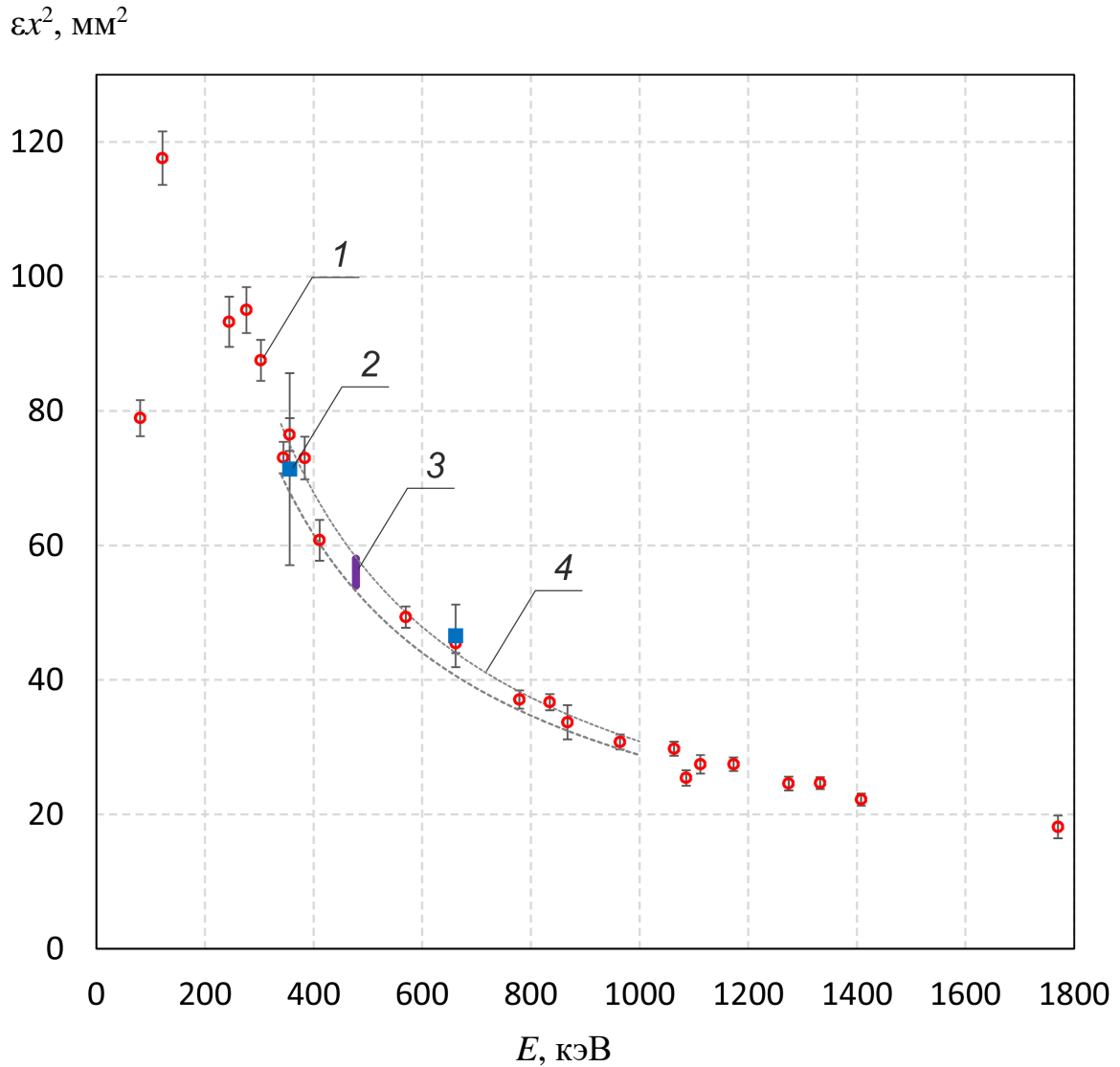


Рисунок 10 – Зависимость функции $\epsilon\chi^2$ от энергии фотонов E : 1 (○) – эталонные радионуклидные источники фотонного излучения из набора ОСГИ-РТ, 2 (■) – источники γ -излучения с радионуклидом барий-133 и цезий-137, 3 – определенная для линии 478 кэВ, 4 – степенные линии трендов

Эффективность регистрации детектора $\epsilon\chi^2$ для линии 478 кэВ определена путем проведения через измеренные точки с учетом их погрешности гладких линий трендов: степенных, полиномиальных и от руки. Анализ этих результатов позволил определить эффективность регистрации детектора $\epsilon\chi^2$ для линии 478 кэВ, равную $55,5 \pm 2,5$ мм².

Так как германиевый кристалл детектора имеет конечный поперечный размер, ранее сделанное предположение о том, что эффективность регистрации ε обратно пропорциональна квадрату расстояния от точечного источника излучения до кристалла детектора при расстоянии $x_i \geq 56$ мм, требует проверки. Эта проверка осуществлена проведением измерений с применением менее мощных источников фотонного излучения, порядка 10^3 Бк. Использование таких источников позволяет при измерении вплотную к детектору обеспечить мертвое время, приемлемое для достоверных измерений, и выяснить, с какого расстояния становится заметным учет геометрического размера кристалла детектора.

Для проведения данных измерений специально изготовлены три точечных радионуклидных источника фотонного излучения: один – фольга ^{197}Au , активированная до требуемой величины потоком нейтронов, два других – ^7Be , полученных соскребанием части литиевого слоя мишени после ее облучения пучком протонов, приведшего к образованию ^7Be в результате реакции $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$. Результаты измерения функции $\varepsilon x^2(x_i)$ для изготовленных источников фотонного излучения представлены на рисунке 11.

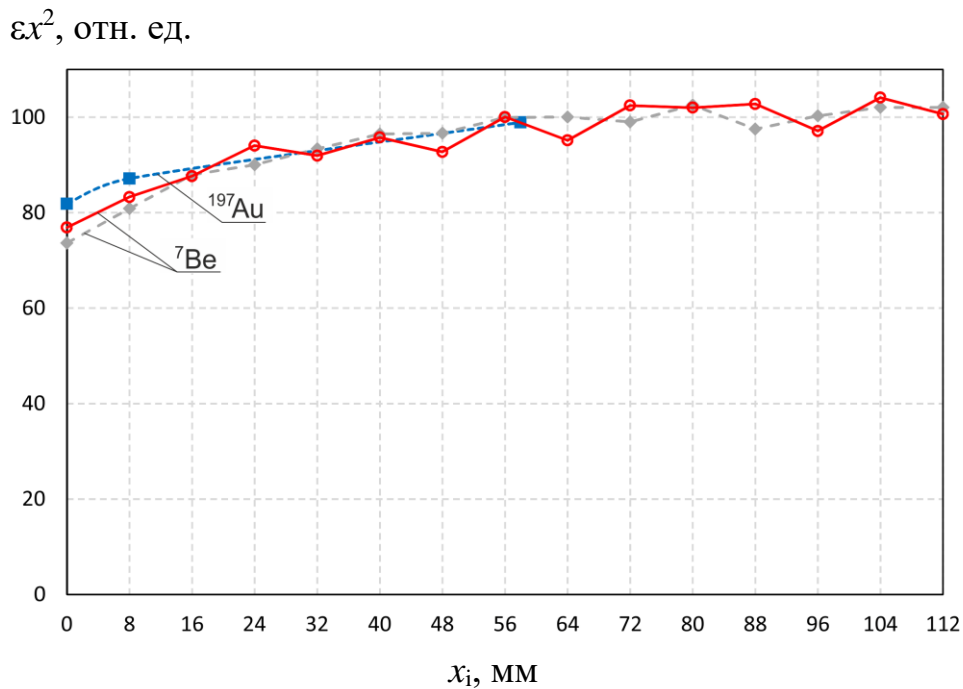


Рисунок 11 – Функция $\varepsilon x^2(x_i)$

В данных измерениях при $x_i = 0$ мертвое время составляло 3,9 % и 0,9 % для ${}^7\text{Be}$ и 0,6 % для ${}^{197}\text{Au}$. Видно, что эффективность регистрации при приближении к поверхности входного окна детектора уменьшается, что указывает на влияние конечного размера кристалла детектора. Вместе с тем видно, что на расстоянии $x_i \geq 56$ мм эффективность регистрации постоянна. Значит, сделанное ранее предположение о том, что эффективность регистрации обратно пропорциональна квадрату расстояния от источника до кристалла, верное.

Таким образом, использование двух мощных источников γ -излучения, семи эталонных радионуклидных источников фотонного излучения, трех слабых самостоятельно изготовленных источников фотонного излучения, учет расположения и геометрического размера кристалла детектора, учет влияния мертвого времени детектора на достоверность регистрации позволило определить значение эффективности регистрации HPGe γ -спектрометра по линии 478 кэВ с точностью 4 %, значительно лучшей 20 %, получаемой при использовании только двух мощных источников γ -излучения, устанавливаемых в место размещения измеряемого образца.

Значение эффективности регистрации детектора ε при измерении активации литиевой мишени, размещаемой на расстоянии $x_i = 1854$ мм, составляет для линии 478 кэВ значение, равное $1,56 \pm 0,07 \cdot 10^{-5}$.

2.3 Измерение выхода нейтронов по активации бериллия-7

Для проведения эксперимента по определению выхода нейтронов из литиевой мишени, созданной для БНЗТ, осуществлено 15 сеансов генерации нейтронов; использовано 13 литиевых мишеней. При изготовлении всех 13 мишеней использовали только новую медную подложку и всегда напыляли новый слой лития. Основные данные о сеансах облучения представлены в таблице 5.

Таблица 5 – Данные о сеансах облучения: № – порядковый номер мишени; дата сеанса – дата генерации нейтронов; продолжительность облучения – время облучения мишени; литий – используемый вид лития: природный или обогащенный изотопом литий-7; позиция – позиция размещения мишени (см. рисунок 2): *A* или *B*; *E* – измеренная энергия протонов; *I* – ток пучка протонов; *d* – примерный поперечный диаметр пучка протонов на поверхности литиевой мишени; Φ – набранный флюенс протонов

№	Дата сеанса	Продолжительность облучения	Вид лития	Позиция мишени (рисунок 2)	<i>E</i> , кэВ	<i>I</i> , мкА	<i>d</i> , см	Φ , Кл
1	18.01.2021 20.01.2021	59 мин 56 мин	^{nat} Li	<i>B</i>	2006 ± 2 2006 ± 1	1033 ± 16 1070 ± 30	1,7	7,200
2	21.01.2021 22.01.2021	1 ч 2 мин 57 мин	^{nat} Li	<i>B</i>	2006 ± 2 2006 ± 2	1056 ± 30 1050 ± 23	1,7	7,200
3	25.01.2021	56 мин	^{nat} Li	<i>B</i>	2006 ± 2	1060 ± 20	1,7	3,600
4	09.03.2021	1 ч	^{nat} Li	<i>A</i>	2000 ± 4	1006 ± 27	4	3,530
5	10.03.2021	59 мин	^{nat} Li	<i>A</i>	2054 ± 7	1018 ± 34	4	3,600
6	11.03.2021	56 мин	^{nat} Li	<i>A</i>	2099 ± 3	1027 ± 60	4	3,600
7	15.03.2021	1 ч	⁷ Li	<i>A</i>	2104 ± 5	1017 ± 40	4	3,600
8	16.03.2021	21 мин	⁷ Li	<i>B</i>	2101 ± 2	1024 ± 11	1,7	1,000
9	19.03.2021	1 ч 4 мин	^{nat} Li	<i>A</i>	2104 ± 5	2021 ± 90	4	7,200
10	23.03.2021	49 мин	^{nat} Li	<i>A</i>	2198 ± 4	1295 ± 140	4	3,600
11	25.03.2021	1 ч 8 мин	⁷ Li	<i>A</i>	2208 ± 5	1003 ± 48	4	3,600
12	29.03.2021	51 мин	^{nat} Li	<i>A</i>	2210 ± 6	1238 ± 80	3	3,600
13	31.03.2021	1 ч 3 мин	⁷ Li	<i>A</i>	2213 ± 7	1010 ± 30	3	3,600

Поскольку продуктом реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ являются не только нейтрон, но и радиоактивное атомное ядро бериллий-7, измерение количества ядер ${}^7\text{Be}$ позволяет однозначно определить количество сгенерированных нейтронов. Радиоактивное атомное ядро ${}^7\text{Be}$ в результате электронного захвата превращается обратно в ядро лития-7 с периодом полураспада 53,22 дня. В 10,3 % случаев распад сопровождается испусканием 478 кэВ фотона. Если не допустить распространения бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер ${}^7\text{Be}$, которое равно количеству

сгенерированных нейтронов, что было сделано. Результаты измерения количества атомных ядер ${}^7\text{Be}$ представлены в таблице 6.

Таблица 6 – Данные по определению активации мишени

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

На примере мишени № 4 покажем, как получен результат. Перед проведением измерения мишеный узел снимают с установки, разбирают, из него вынимают собственно литиевую мишень, которую помещают в прозрачный герметичный пластиковый пакет и размещают по оси спектрометра так, чтобы поверхность литиевого слоя была направлена в сторону спектрометра и расстояние между ней и входным окном детектора было равно 1854 мм. 10 марта 2021 г. в 14:56 был дан старт программному обеспечению спектрометра измерить энергетический спектр фотонного излучения. Измерение продолжалось 7 мин. Скорость счета линии 478 кэВ составила величину $63,13 \text{ с}^{-1}$, точность измерения равна 0,6 %, мертвое время 1,4 %. Так как эффективность регистрации спектрометра по линии 478 кэВ при размещении источника излучения на расстоянии 1854 мм равна $(1,56 \pm 0,07) \cdot 10^{-5}$, разделив скорость счета

на эффективность регистрации, получим интенсивность излучения 478 кэВ фотонов: $63,13 / 1,56 \cdot 10^{-5} = 4,07 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$. Распад атомного ядра бериллия сопровождается испусканием 478 кэВ фотона только в 10,3 % случаев, поэтому разделив полученную интенсивность излучения 478 кэВ фотонов на 0,103, получим значение активности мишени, равное $A = 4,07 \cdot 10^6 / 0,103 = 3,93 \cdot 10^7 \text{ Бк}$. Зная активность источника излучения, определим количество радиоактивных ядер N из следующего соотношения: $N = \frac{At_{1/2}}{\ln 2}$, где $t_{1/2} = 53,22 \text{ дня} = 4,60 \cdot 10^6 \text{ с}$, $\ln 2 = 0,693$. Следовательно, $N = \frac{3,93 \cdot 10^7 \cdot 4,60 \cdot 10^6}{0,693} = 2,606 \cdot 10^{14}$. Таким образом, на момент измерения в литиевой мишени содержалось $2,606 \cdot 10^{14}$ атомных ядер бериллий-7. Поскольку измерения проведены после окончания генерации нейтронов не сразу, а позднее (конкретно мишени № 4 спустя 25 часов), часть атомных ядер бериллия распалась. Согласно закону радиоактивного распада, число нераспавшихся атомов в момент времени t связано с начальным (в момент $t = 0$) числом атомов соотношением $\frac{N(t)}{N_0} = e^{-\frac{0,693 t}{t_{1/2}}}$. При $t = 9 \cdot 10^4 \text{ с}$ (25 часов) $N(t) = 0,9865 \cdot N_0$. Следовательно, к моменту окончания генерации нейтронов в литиевой мишени содержалось атомных ядер бериллий-7 на 1,35 % больше, чем в момент измерения, а именно $2,642 \cdot 10^{14}$. Так как сама генерация нейтронов продолжалась 1 ч, то и в момент генерации часть ядер бериллий-7 распалась. Предполагая постоянство тока, получим, что к концу генерации распалось 0,027 % образовавшихся ядер бериллий-7. Учитывая эту небольшую поправку, получим полное число ядер, образовавшихся в литиевой мишени № 4, равное $2,64 \cdot 10^{14}$. Значит, в сеанс облучения 9 марта 2021 г. было произведено $2,65 \cdot 10^{14}$ нейтронов.

Погрешность измерения количества произведенных нейтронов, полагая период полураспада и вероятность испускания 478 кэВ фотона точными табличными значениями, определяется эффективностью регистрации детектора и точностью измерения интенсивности линии излучения; она составляет 5 %.

Обратим внимание на то, что представленная в таблице 5 энергия протонов $E = e U_{\text{H-}} + 2 e U_{\text{ВВ}}$, где e – заряд электрона; $e U_{\text{H-}}$ – энергия инжектируемых в ускоритель отрицательных ионов водорода, обычно 22 кэВ; $U_{\text{ВВ}}$ – потенциал высоковольтного источника высокого напряжения. Потенциал измеряют омическим делителем напряжения, установленным внутри бака высокого давления высоковольтного источника питания.

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

Измерение потенциала осуществляют с частотой 1 Гц и используют в программе управления установкой для поддержания потенциала высоковольтного электрода ускорителя на заданном уровне. Ранее при эксплуатации ускорителя было замечено, что потенциал высоковольтного источника питания и, как следствие, энергия протонов плавно уменьшаются в течение рабочего дня. Возможно, это связано с непропорциональным изменением сопротивлений плеч омического делителя при его нагреве. Так, при изучении влияния радиационного блистеринга на выход нейтронов [128] установлено, что в течение 5 ч непрерывной работы ускорителя при токе 0,5 мА энергия протонов уменьшается на 0,65 %.

Калибровку омического делителя напряжения проводят по пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Блоком детектирования БДМН-100-07 (ООО "Доза", Россия) измеряют зависимость мощности дозы нейтронного излучения от энергии протонов в диапазоне от 1,910 до 2,000 МэВ, детектор располагался на значительном расстоянии от мишени. В этом диапазоне энергий зависимость выхода нейтронов от энергии линейная; достоверность линейной аппроксимации значений, рассчитанных с шагом 0,01 МэВ, $R^2 = 1$. Заметим, что эта прямая линейной аппроксимации данных пересекает ось абсцисс не при значении порога

реакции в 1,882 МэВ, а при несколько большем значении – 1,885 МэВ (рисунок 22 в работе [128]).

При проведении данных исследований использовали калибровку, проведенную ранее. Поскольку предварительные оценки измеренного выхода нейтронов не согласовывались с расчетным, калибровка омического делителя напряжения была повторена после проведения исследований и установлено, что измеряемая энергия протонов, представленная в таблице 5, на 30 ± 10 кэВ выше истинной в области 2 МэВ.

В области 2,2 МэВ калибровка энергии протонов дополнительно проведена по реакции ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ (порог реакции 2,057 МэВ). Для этого бериллиевый диск диаметром 32 мм, толщиной 9,7 мм был плотно притянут к медной подложке мишени через индий-галлиевый сплав и облучен пучком протонов в положении *B*. Детектором нейтронов с литийсодержащим сцинтиллятором GS20 (The Saint-Gobain Crystals, США), установленными перед мишенью, измерена зависимость регистрируемого сигнала от энергии протонов. Результаты измерения и зависимость выхода нейтронов от энергии, посчитанная программой PINO, показаны на рисунке 12. Здесь при представлении экспериментальных результатов по оси абсцисс отложена не энергия E , задаваемая программой управления установкой, а энергия, полученная умножением энергии E на коэффициент k , подобранный таким образом, чтобы экспериментальные данные в наилучшей степени вписывались в расчетные. В данном случае $k = 0,983 \pm 0,001$. Это означает, что, если программой управления установки выставлено удерживать энергию протонов 2200 кэВ, в действительности энергия протонов равна 2163 ± 2 кэВ. Если программой выставлено удерживать энергию протонов 2000 кэВ, в действительности энергия протонов равна 1966 ± 2 кэВ.

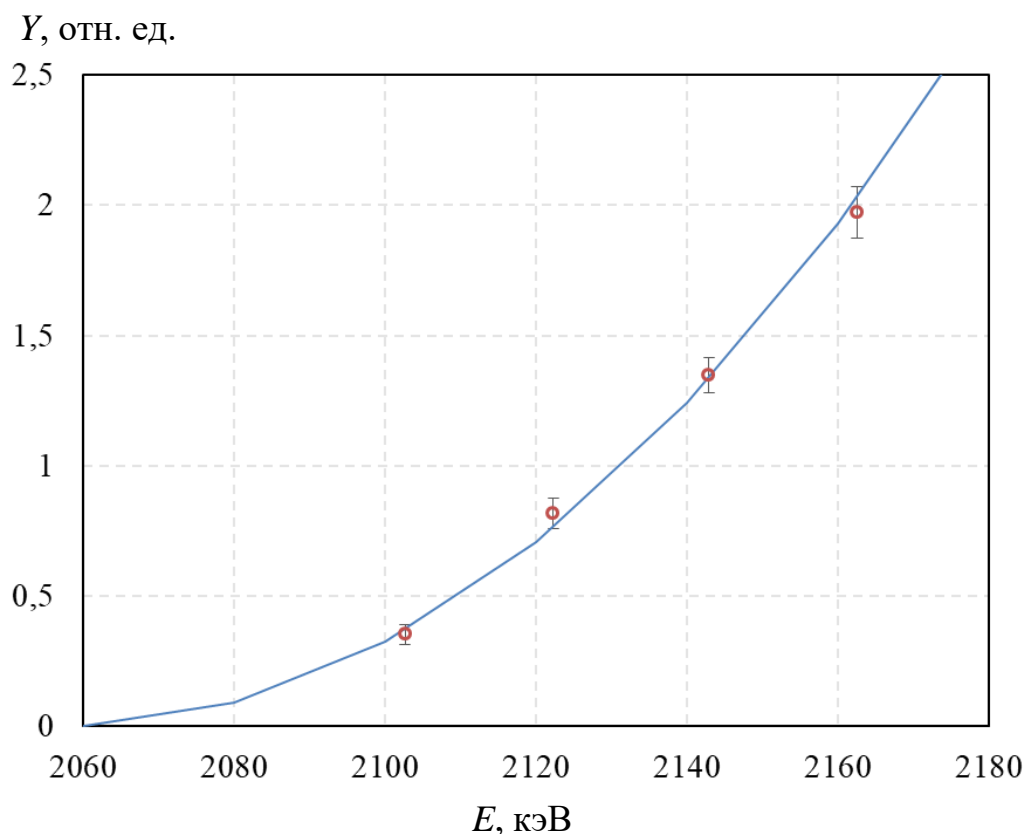


Рисунок 12 – Зависимость выхода нейтронов Y от энергии протонов E в реакции ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$: \circ – измеренные, сплошная линия – рассчитанные программой PINO [59]

Таким образом, нами осуществлена калибровка омического делителя напряжения, и в дальнейших расчетах будет сделана поправка на корректную энергию. Здесь сразу следует заметить, что данная корректировка применима только для режима, когда установка проработала некоторое время и источник высокого напряжения нагрелся. В начальный момент времени это не так. Для того, чтобы достичь точности в этом процессе, осуществлен следующий эксперимент.

В сеансах облучения мишеней № 12 и 13 (таблица 5) реализовали режим с постоянной энергией протонов, не выставяемой, а реальной. Для этого использовали поворотный магнит как энергоанализатор, точность определения тока у которого не менее 0,1 % от максимального значения тока 1000 А. Если реальная энергия протонов уменьшается, то пучок протонов на поверхности литиевой мишени смещается. Увеличением энергии, выставяемой в системе управления установкой, пучок протонов возвращается в исходное положение.

Положение пучка протонов в центре мишени контролировалось следующими диагностическими средствами: i) видеокамерой, регистрирующей люминесценцию лития под действием протонов [23], ii) пятью термодатчиками, размещенными внутри медного диска литиевой мишени, одна в центре, другие четыре на расстоянии 18 мм от центра, равномерно разнесенные по азимуту, и iii) по показаниям двух малогабаритных детекторов нейтронов с полистирольным литьевым сцинтиллятором, обогащенным бором, приклеенных к вакуумной камере мишенного узла вблизи литиевой мишени [61]. Для улучшения чувствительности диагностических средств к смещению пучка развертка пучка протонов, установленная в вертикальном тракте транспортировки пучка, не включалась. В этом случае поперечный размер пучка протонов на поверхности мишени имел характерный диаметр 3 см [129].

На рисунке 13 представлена временная зависимость энергии протонов, сигнала детектора нейтронов и температуры в центре литиевой мишени во время сеанса облучения мишени № 12. Видно, что выход нейтронов и температура в центре мишени практически постоянна, в то время как выставяемую энергию пучка пришлось практически линейно поднимать в течение первых 15 мин облучения на 13 кэВ. После 15 мин дальнейшей коррекции энергии для поддержания пучка протонов в центре мишени не требовалось. Выставляемая энергия протонов в режиме плато была 2213 ± 2 кэВ. Умножив ее на коэффициент $k = 0,983 \pm 0,001$, получим реальную энергию протонов во время облучения мишени № 12; она равна 2175 ± 3 кэВ. Сразу обратим внимание на то, что и в самом начале облучения реальная энергия протонов была равна 2175 кэВ, поскольку пучок протонов попадал в центр мишени. Значит, в самом начале облучения коэффициент $k = 2175 / 2200 = 0,989$.

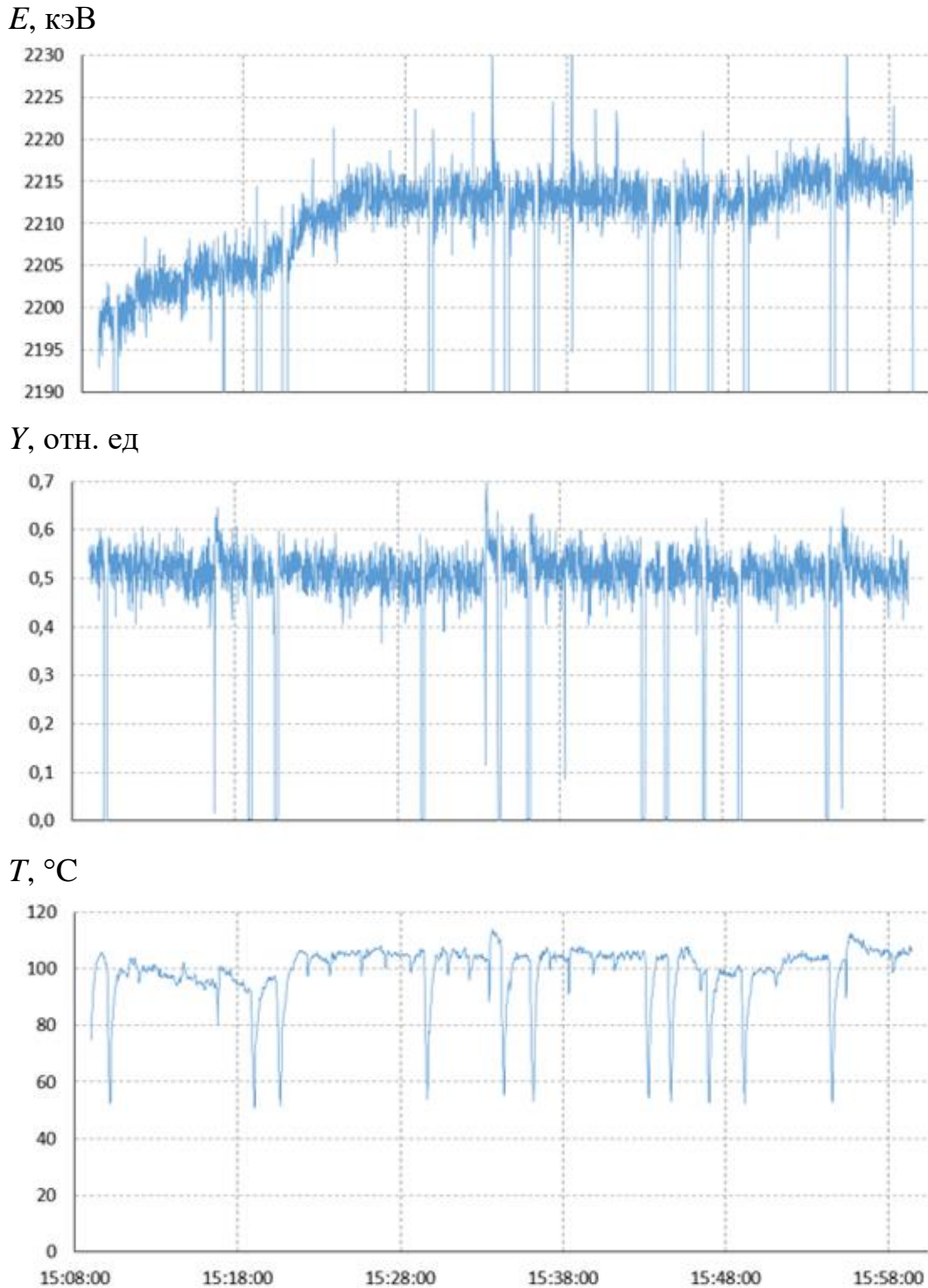


Рисунок 13 – Временная зависимость энергии протонов E , сигнала детектора нейтронов Y и температуры в центре литиевой мишени T во время сеанса облучения мишени № 12

Следует отметить, что режим работы ускорителя при энергии 2,2 МэВ был практически предельным и сопровождался, как видно на рисунке 13,

11-ю пробоями по высокому напряжению, после которых параметры пучка протонов возвращались к исходным за 15 с.

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

Для других сеансов облучения, когда поворотным магнитом как энергоанализатором не поддерживали постоянство энергии протонов, необходимо сделать еще одно предположение, а именно: коэффициент k зависит от времени. В первые 15 мин он линейно падает с 0,989 (оценка приведена выше) до 0,983 и далее в течение 45 мин остается постоянным. Таким образом, средневзвешенный коэффициент k сеансов облучения мишеней №№ 1–11 будет равен $0,984 \pm 0,002$. Его будем использовать при коррекции энергии протонов в сеансах облучения этих мишеней.

Поскольку энергия протонов определена, зная флюенс протонов, определим выход нейтронов, используя программу PINO. При вычислении выхода нейтронов учтем три поправки, приводящие к небольшому уменьшению выхода нейтронов.

Во-первых, учтем процентное содержание лития-7. Для напыления использовали природный или литий, обогащенный изотопом литий-7, производства Новосибирского завода химконцентратов. В партии природного лития содержание собственно лития было 99,956 %; остальные 0,044 % – примеси Na, K, Ca, Mg, Mn, Fe, Al, SiO₂ и N. Содержание изотопа 7 в природном литии варьируется от 92,41 % [130] до 92,58 % [131]; мы будем далее полагать содержание лития-7 в природном литии, равное среднему значению, а именно 92,5 %. В обогащенном литии атомная доля литий-7 составляла 99,988 %; остальное – практически те же примеси.

Во-вторых, в используемом природном литии присутствуют примеси в концентрации 0,044 %. Средневзвешенное значение атомного номера примесей, в соответствии с паспортом продукта, равно 15. Это значение в 5 раз превосходит атомный номер лития, следовательно, торможение протона, определяемое

взаимодействием с электронами, в 5 раз эффективнее на примесях, чем на литии. Значит, примеси в концентрации 0,044 % уменьшают выход нейтронов на 0,22 %. В литии, обогащенном изотопом литий-7, концентрация примесей равна 0,012 %, значит, их присутствие уменьшает выход нейтронов на 0,06 %.

В-третьих, учтем вторичную эмиссию электронов при измерении тока протонов. Его измеряют по падению напряжения на калиброванном сопротивлении, подключенном к мишенному узлу, электрически изолированному от установки. Хотя мишенный узел выполнен в виде глубокого цилиндра Фарадея, эмиссия электронов из него возможна. Для измерения эмиссии электронов шиббер как часть мишенного узла был дополнительно изолирован и на него подавали потенциал. Вольт-амперная характеристика цилиндра Фарадея представлена на рисунке 14. Видно, что подача запирающего отрицательного напряжения уменьшает ток в среднем на 1 % с 823,5 до 814 мкА. Значит, измеренный флюенс протонов завышен на 1 %.

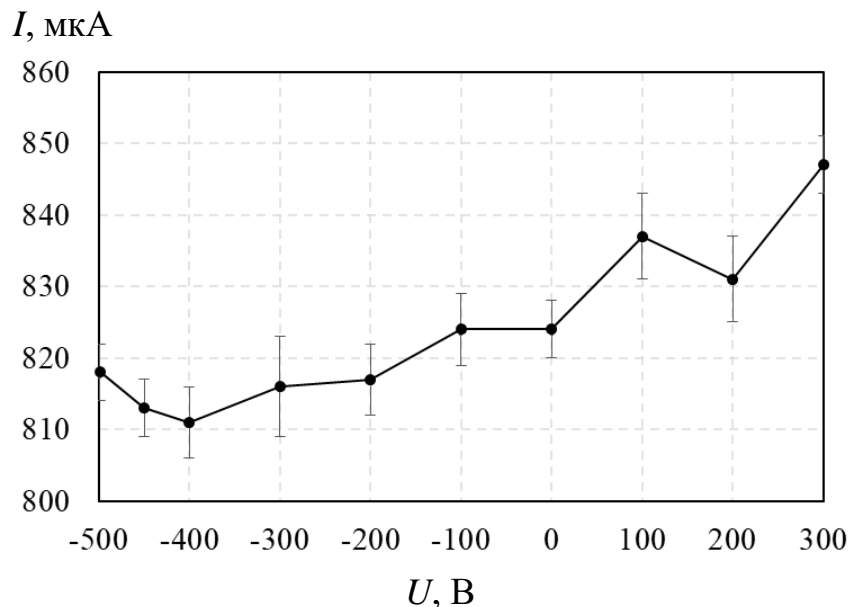


Рисунок 14 – Вольт-амперная характеристика мишенного узла

Как уже говорилось, если не допустить распространения бериллия с литиевой мишени, то измерение активации мишени позволяет определить количество наработанных ядер ${}^7\text{Be}$, которое равно количеству сгенерированных нейтронов. При проведении данного исследования измеряли активацию не только

литиевой мишени, но и мишенного узла, из которого была вынута мишень. Установлено, что часть бериллия-7 была перемещена с мишени на мишенный узел, но эта часть мала – менее 1/10 000 во всех сеансах облучения. Ввиду малости перемещения радиоактивного изотопа бериллий-7 с мишени предложенный метод измерения выхода нейтронов применим.

Учтя все поправки, представим окончательный результат проведенного исследования в таблице 7, в которой для каждой мишени приведены значения измеренного количества атомных ядер бериллий-7, образованных в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, корректное значение энергии протонов, расчетное значение количества сгенерированных нейтронов и в последнем столбце отношение измеренного количества атомных ядер бериллий-7 к расчетному количеству нейтронов. Полученный результат в наглядном виде представлен на рисунке 15.

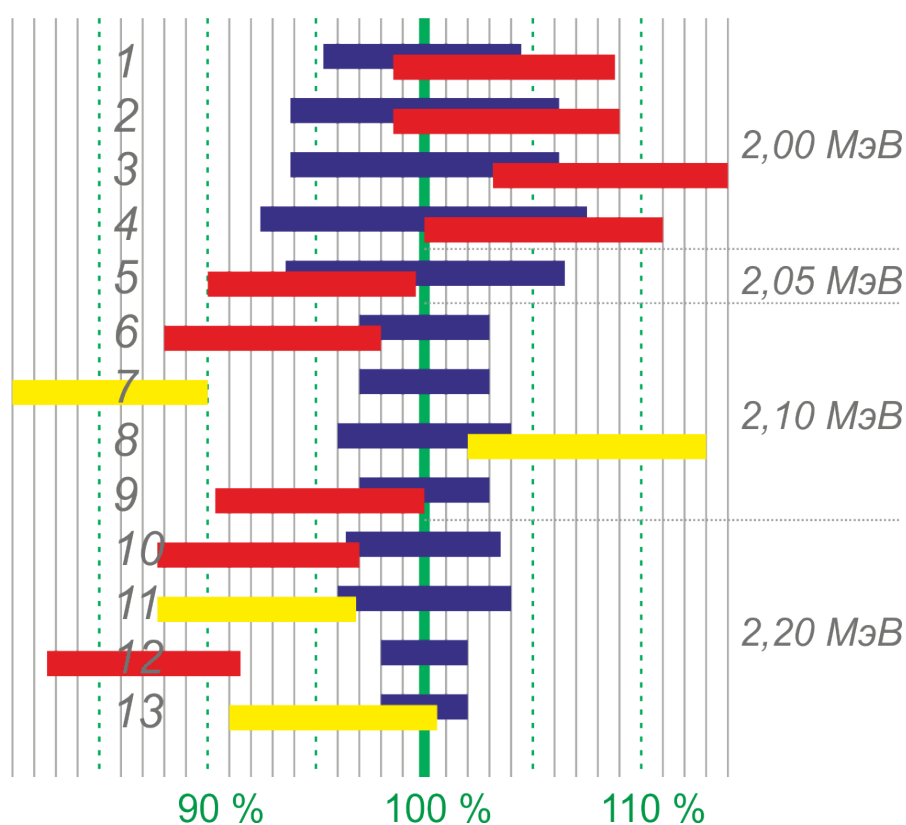


Рисунок 15 – Результат проведенного сравнения измеренного выхода нейтронов с расчетным: сверху вниз – мишени по порядку, синие прямоугольники – интервалы расчетного количества нейтронов, красные и желтые – интервалы измеренного количества нейтронов (красные – природный литий, желтые – обогащенный изотопом литий-7). Справа приведены характерные значения энергии протонов

Таблица 7 – Результат проведенного исследования: № – порядковый номер мишени; Li – тип использованного лития (природный или обогащенный изотопом лития-7); N_{7Be} – измеренное количество ядер бериллия-7; $E_{\text{реальное}}$ – реальная энергия протонов; Y_n – расчетное количество нейтронов; N_{7Be} / Y_n – отношение измеренного количества ядер бериллия-7 к расчетному количеству нейтронов, %

№	Тип Li	N_{7Be} , 10^{14} шт. измеренное	$E_{\text{реальное}}$, кэВ	Y_n , 10^{14} шт. расчетное	N_{7Be} / Y_n , %
1	^{nat}Li	$5,69 \pm 0,28$	1973 ± 4	$5,48 \pm 0,25$	104 ± 10
2	^{nat}Li	$5,70 \pm 0,29$	1973 ± 5	$5,49 \pm 0,34$	104 ± 11
3	^{nat}Li	$2,98 \pm 0,15$	1973 ± 5	$2,74 \pm 0,17$	109 ± 11
4	^{nat}Li	$2,64 \pm 0,13$	1967 ± 6	$2,50 \pm 0,19$	106 ± 13
5	^{nat}Li	$4,02 \pm 0,20$	2020 ± 8	$4,25 \pm 0,27$	95 ± 11
6	^{nat}Li	$5,37 \pm 0,27$	2065 ± 5	$5,75 \pm 0,17$	93 ± 8
7	7Li	$5,44 \pm 0,27$	2069 ± 6	$6,37 \pm 0,22$	85 ± 9
8	7Li	$1,89 \pm 0,09$	2067 ± 5	$1,75 \pm 0,05$	108 ± 8
9	^{nat}Li	$11,2 \pm 0,56$	2069 ± 6	$11,76 \pm 0,42$	95 ± 9
10	^{nat}Li	$9,07 \pm 0,45$	2162 ± 6	$9,82 \pm 0,33$	92 ± 8
11	7Li	$10,4 \pm 0,52$	2172 ± 7	$11,27 \pm 0,44$	92 ± 9
12	^{nat}Li	$9,19 \pm 0,46$	2174 ± 3	$10,57 \pm 0,17$	87 ± 7
13	7Li	$11,1 \pm 0,56$	2176 ± 3	$11,59 \pm 0,2$	96 ± 7

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

Видно, что измеренное количество бериллия-7 всегда немного больше расчетного, если мишень размещают в горизонтальном тракте (сеансы 1–3 и 8), и практически всегда меньше, если мишень размещают в вертикальном тракте

(сеансы 4–7 и 9–13). Возможно, это связано с большим размером пучка протонов и его смещением по поверхности мишени, из-за чего часть пучка протонов могла не попадать в область напыления лития, хотя визуально по отпечатку пучка на поверхности лития это не наблюдалось.

2.4 Выводы

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

Высокая точность эффективности регистрации HPGe γ -спектрометра по линии 478 кэВ достигнута использованием двух мощных источников γ -излучения, семи эталонных радионуклидных источников фотонного излучения, трех слабых самостоятельно изготовленных источников фотонного излучения, учетом расположения и геометрического размера кристалла детектора, учетом влияния мертвого времени детектора на достоверность регистрации. Получение пучка протонов с постоянной энергией достигнуто использованием поворотного магнита как энергоанализатора и контролем положения пучка на поверхности литиевой мишени по регистрации люминесценции лития под действием протонов, по измерению температуры литиевой мишени термопарами, размещенными внутри медного диска мишени, и по показаниям двух малогабаритных детекторов нейтронов с полистирольным литьевым сцинтиллятором, обогащенным бором, приклеенных к вакуумной камере мишенного узла вблизи литиевой мишени.

Результаты исследования представлены и обсуждены на XXVII Всероссийской конференции по ускорителям заряженных частиц (Алушта, 2021) и опубликованы в ее трудах [13]. Результаты исследования опубликованы в высокорейтинговом научном журнале первого квартиля [24] в специальном выпуске «Бор-нейтрон-захватная терапия: от ядерной физики к биомедицине». Результаты исследования признаны одним из основных результатов реализации гранта Российского научного фонда поддержки лаборатории мирового уровня [132].

Глава 3. Исследование элементного состава литиевой мишени

В Главе 3 приведены результаты измерения концентрации примесей в литиевом слое мишени, способных уменьшить выход нейтронов, результаты изучения динамики накопления примесей при длительном облучении пучком ионов, а также результаты изучения взаимодействия литиевой мишени с газами и воздухом для разработки технологии поставки литиевой мишени от производителя потребителю.

3.1 Конструкция литиевой мишени

При разработке литиевой мишени для БНЗТ учитывают следующее.

Литиевый слой должен быть из чистого металлического лития, должен быть тонким и в твердом состоянии. Первое обеспечивает максимальный выход нейтронов (выход нейтронов из гидрида, оксида и фторида лития меньше, чем из чистого лития, в 1,43, 2 и 3,3 раза соответственно), второе уменьшает поток нежелательных сопутствующих 478 кэВ фотонов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ (толщина лития такая, чтобы на выходе из литиевого слоя энергия протонов была чуть ниже 1,882 МэВ – порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$), третье предотвращает распространение по установке образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7.

Подложка, на которую напыляют литиевый слой, должна быть тонкой, интенсивно охлаждаемой, стойкой к радиационным повреждениям, простой в изготовлении и легкоъемной для ее утилизации.

Разработанная литиевая мишень представляет собой тонкий слой чистого металлического лития для генерации нейтронов, нанесенный на тонкую медную подложку для эффективного теплосъема. Подложка представляет собой медный диск диаметром 144 мм толщиной 8 мм. Со стороны протонного пучка на него

термическим способом напыляют тонкий слой лития кристаллической плотности диаметром 84 мм. С обратной стороны медного диска внутри диаметра 122 мм сделаны четыре двухзаходных спиралевидных канала глубиной 3 мм, шириной 6 мм, с перегородкой между каналами толщиной 1 мм для охлаждения водой. К обратной стороне медного диска прижимают плоский алюминиевый диск с отверстием в центре для подачи охлаждающей воды и двумя отверстиями по периферии для отвода воды. В медном диске с торца сделаны отверстия, в которые вставлены термосопротивления для контроля температуры мишени.

Литиевая мишень является частью мишенного узла, включающего в себя алюминиевую трубу с внутренним диаметром 100 мм и вакуумный шибер со стандартным соединением DN100. При проведении научных исследований используют мишенные узлы с двумя или тремя патрубками, расположенными под углом 135° , $142,5^\circ$ или 168° к оси пучка, для наблюдения или размещения диагностического оборудования. Характерный вид мишенного узла представлен на рисунке 16.

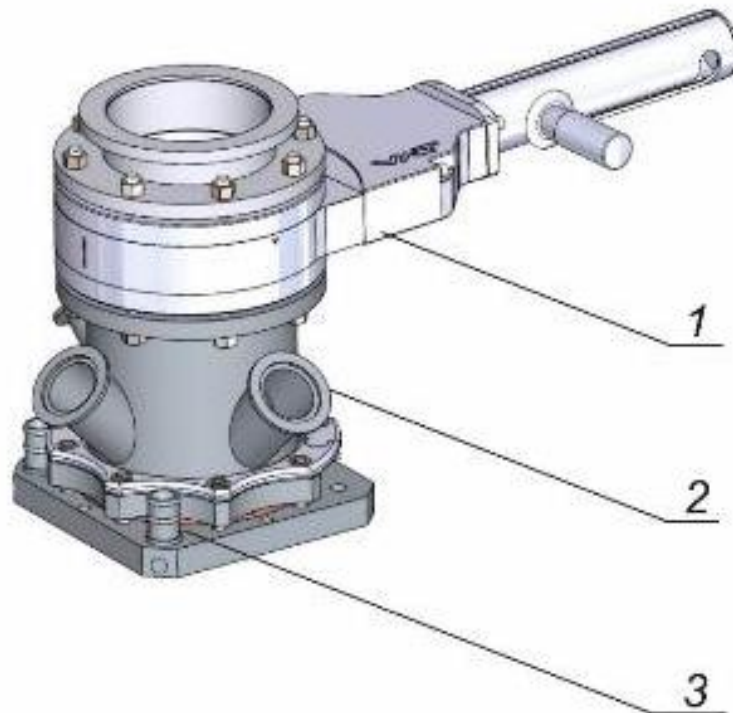


Рисунок 16 – Мишенный узел для проведения научных исследований: 1 – шибер, 2 – патрубки, 3 – подача охлаждения

Термическое напыление лития на мишень в вакууме осуществляют на отдельном стенде (рисунок 17). Подробное описание стенда и технологии напыления приведено в работе [10]. Стенд представляет собой вакуумную камеру со средствами вакуумной откачки, в которой на ввод движения с шаговым двигателем установлен титановый стакан с плоским керамическим нагревателем инфракрасного излучения.

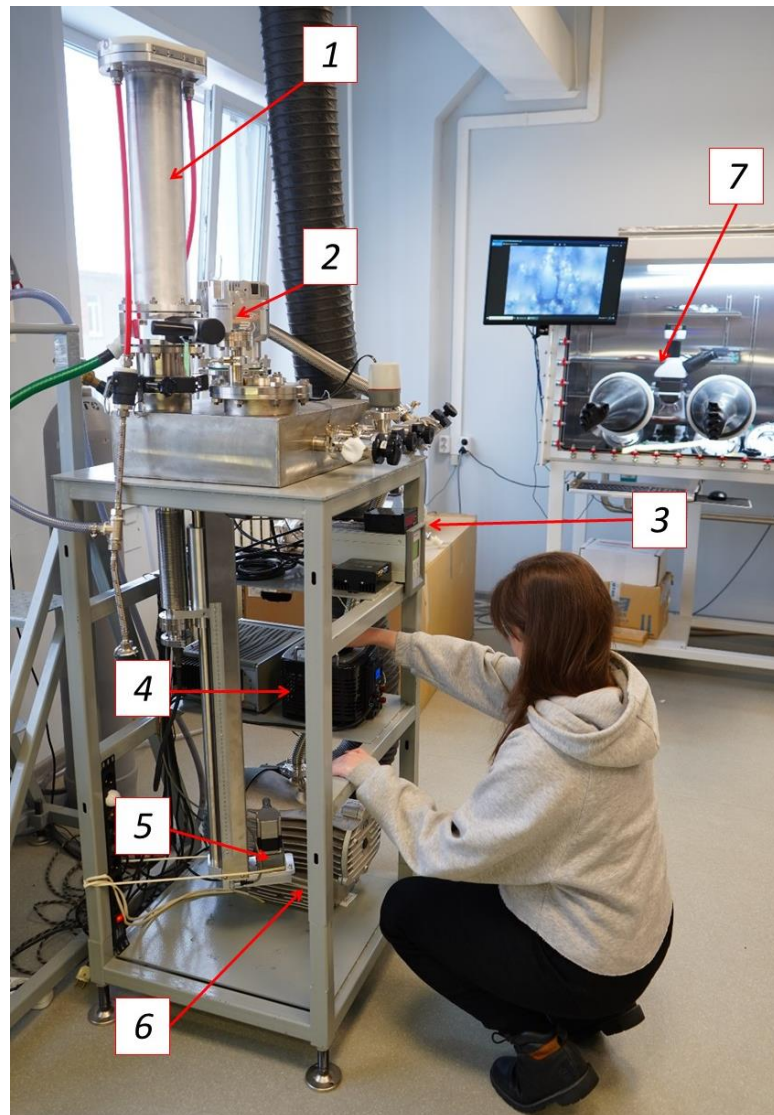


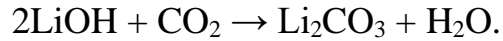
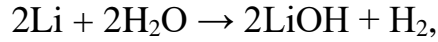
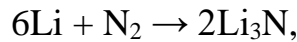
Рисунок 17 – Стенд напыления лития: 1 – мишенный узел, 2 – турбомолекулярный насос, 3 – датчик температуры, 4 – ЛАТР, 5 – шаговый двигатель, 6 – форвакуумный насос, 7 – перчаточный бокс с микроскопом

Для напыления используют природный литий или литий, обогащенный изотопом литий-7, производства Новосибирского завода химконцентратов. В партии природного лития содержание лития составляет 99,956 %; остальные 0,044 % – примеси $\text{Na} < 0,04$ %, $\text{K} < 0,005$ %, $\text{Ca} < 0,03$ %, $\text{Mg} < 0,02$ %, $\text{Mn} < 0,02$ %, $\text{Mn} < 0,001$ %, $\text{Fe} < 0,005$ %, $\text{Al} < 0,003$ %, $\text{SiO}_2 < 0,01$ % и $\text{N} < 0,05$ %. Содержание изотопа 7 в природном литии варьируется от 92,41 % [130] до 92,58 % [131]; мы будем далее полагать содержание лития-7 в природном литии, равное среднему значению, а именно 92,5 %.

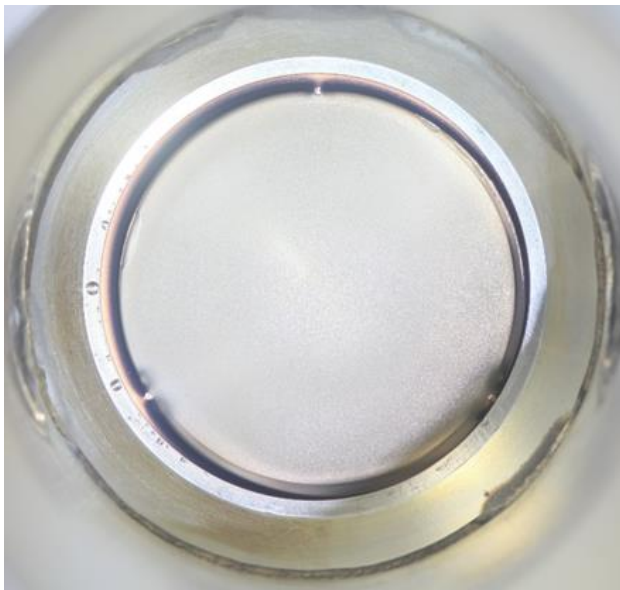
Литий хранят в перчаточном боксе MBraun MB-200MOD (MBraun, Германия), заполненном аргоном особой чистоты 99,9999 %. Перед напылением необходимое количество лития с точностью 0,1 мг взвешивают на лабораторных микровесах OHAUS (США) внутри перчаточного бокса. После взвешивания литий пакут в герметичную пробирку, извлекают из перчаточного бокса и вскрывают пробирку непосредственно перед укладкой лития на дно титанового стакана в стенде напыления лития. Литий на дне стакана закрывают специальным экраном с щелями для равномерного напыления и устанавливают мишенный узел на стенд. Затем стенд напыления лития вместе с мишенным узлом откачивают до давления 10^{-4} Па, включают нагреватель и осуществляют термическое напыление лития на поверхность мишени, охлаждаемую сжатым воздухом. Напыление лития обычно происходит в течение 2 ч при температуре нагревателя около 500 °С. По прошествии двух часов нагреватель выключают и выводят титановый стакан из мишенного узла с помощью шагового двигателя, после чего закрывают шибер на мишенном узле. Узел с напыленным литием и с сохранением вакуума отсоединяют от стенда напыления, переносят на установку и присоединяют к ней.

Известно, что литий – химически активный металл. На воздухе он вступает во взаимодействие с азотом с образованием нитрида лития. В отличие от чистого лития, имеющего серебристо-белый цвет, нитрид лития – соединение зеленовато-черного цвета. Во влажной среде литий вступает во взаимодействие

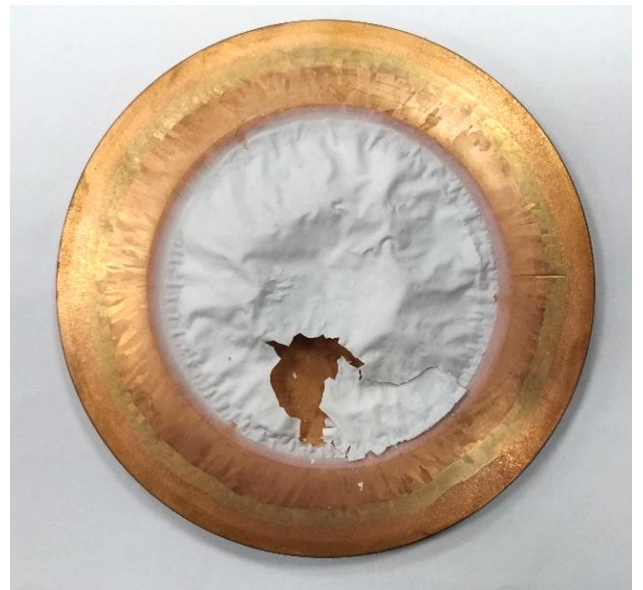
с водой, образуя гидроксид, а затем гидроксид, реагируя с углекислым газом, превращается в карбонат лития:



На рисунке 18 показано, как изменяется внешний вид литиевого слоя при нахождении мишени на воздухе. Сразу после напыления литий равномерно распределен по поверхности мишени и имеет серебристый оттенок (рисунок 18 *a*), однако после нескольких дней пребывания на воздухе, особенно в помещениях с повышенной влажностью, весь литий прореагирует до карбоната лития. Карбонат лития выглядит как хрупкая белая корка на подложке мишени (рисунок 18 *б*).



(a)



(б)

Рисунок 18 – (a) – мишень в вакууме со свежим литиевым слоем, (б) – мишень, находящаяся на воздухе в течение нескольких дней

Образование нитридного или карбонатного слоя на нейтроногенерирующей мишени делает ее непригодной для дальнейшей эксплуатации по нескольким причинам. Во-первых, любые примеси в составе нейтроногенерирующего слоя

снижают эффективность генерации нейтронов. Во-вторых, в результате генерации нейтронов на мишени нарабатывается радиоактивный ^7Be с периодом полураспада 53 дня. Если нейтроногенерирующий слой будет хрупким и сыпучим, как карбонат лития, мишень будет опасно транспортировать после генерации нейтронов. При ее перемещении нейтроногенерирующий слой может быть поврежден, что приведет к распространению радиоактивного изотопа бериллия-7. Поэтому обычно литиевую мишень изготавливают, хранят и используют только в вакууме.

3.2 Исследование элементного состава литиевого слоя мишени

Исследование элементного состава литиевого слоя мишени и его изменения по мере облучения пучком протонов проведено на ускорительном источнике нейтронов ВИТА в Институте ядерной физики СО РАН [25]. Схема экспериментальной установки представлена на рисунке 19.

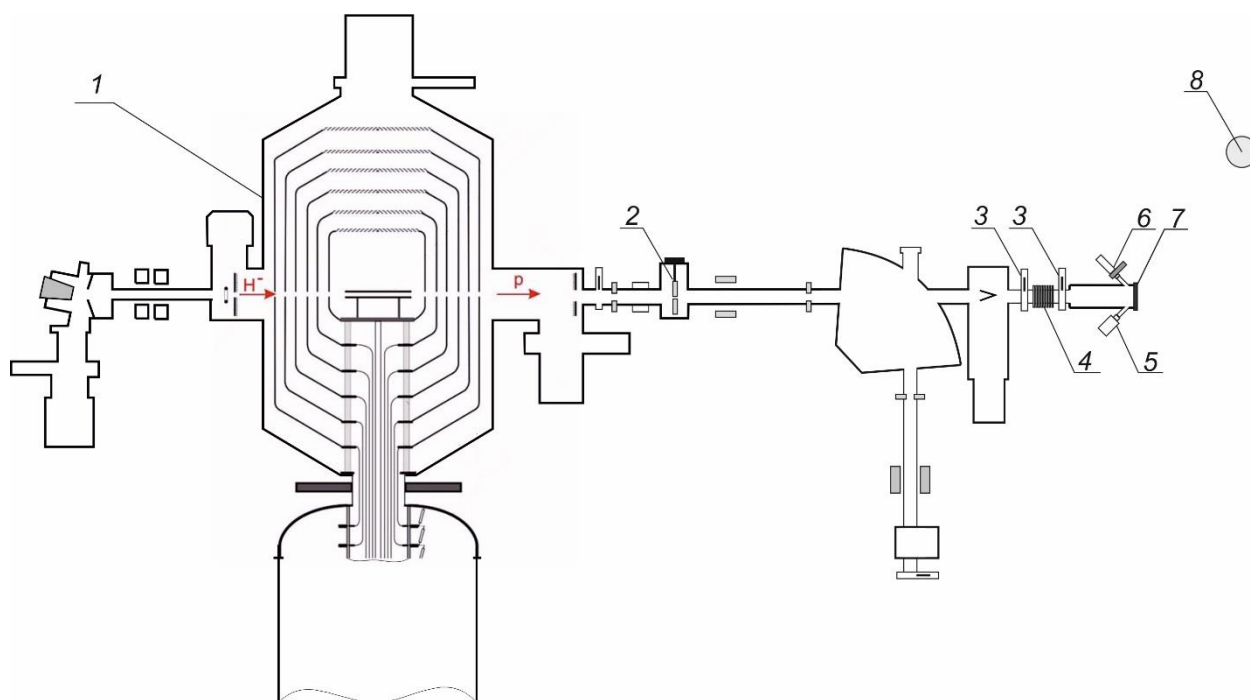


Рисунок 19 – Схема экспериментальной установки: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – охлаждаемый коллиматор с апертурой 1 мм, 3 – шиберы, 4 – сиффон, 5 – видеокамера, 6 – α -спектрометр, 7 – литиевая мишень, 8 – дозиметр нейтронного излучения

В ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией получают стационарный моноэнергетический пучок протонов с энергией от 0,4 до 2,2 МэВ, током от 0,5 до 5 мА и направляют его на литиевую мишень.

Для определения элементного состава образца используют метод спектроскопии ионного рассеяния [133]. Суть метода заключается в облучении мишени пучком протонов и измерении энергетического спектра обратно отраженных протонов, теряющих энергию в результате упругого или неупругого рассеяния на атомных ядрах мишени. Величина потери энергии характеризуется атомной массой элемента мишени, углом рассеяния, глубиной залегания и рассчитывается теоретически. Для определения глубинного распределения элементного состава исследуемого образца используют программу SIMNRA v.7.03 (Max Planck Institute for Plasma Physics, Germany) [134]. Для измерения интенсивности и энергии обратно отраженных протонов на один из патрубков мишенного узла, расположенный под углом 135° к оси пучка, через шиббер установлен спектрометр α -излучения на основе кремниевого детектора ПДПА-1К и цифрового спектрометрического устройства ЦСУ-1К (Институт физико-технических проблем, Дубна, Россия) [135]. Площадь чувствительной поверхности детектора $S = 20 \text{ мм}^2$, энергетическое разрешение – 13 кэВ, энергетический эквивалент шума – 7 кэВ, емкость – 30 пФ, толщина входного окна – 0,08 мкм, стандартный естественный фон в диапазоне 3–8 МэВ – 0,15 имп/см²ч.

При проведении измерений ток пучка протонов уменьшают введением охлаждаемого коллиматора 2 с диаметром отверстия 1 мм. Поскольку пучок протонов характеризуется расходимостью протонов $\pm 1,5$ мрад [136], его поперечный размер на поверхности литиевой мишени, расположенной в 4 м за коллиматором, составляет ~ 10 мм. Положение протонного пучка на мишени контролируют по люминесценции лития, регистрируемой видеокамерой Hikvision (Китай) 5. Ток пучка протонов, облучающих мишень, измеряют омическим делителем напряжения, подсоединенным к мишенному узлу, электрически изолированному от установки. Мишенный узел с литиевой мишенью с помощью

шиберов 3 присоединен к установке через сильфон 4, что позволяет сдвигать ее в горизонтальной плоскости относительно оси установки электрическим линейным актуатором Bohua (Китай) на расстояние до 5 см в обе стороны. Точность установки положения актуатора составляет 0,5 мм. Мощность дозы нейтронного излучения измеряют нейтронным дозиметром 8 БДМН-100-07 (ООО "Доза", Россия), размещенным на стене радиационно-защищенного помещения на расстоянии 5,4 м от мишени под углом 22° к направлению пучка протонов.

3.3 Серия I. Исследование чистоты свеженапыленного литиевого слоя

Для исследования чистоты свеженапыленного литиевого слоя стандартным способом изготавливают литиевые мишени и измеряют энергетический спектр обратно отраженных протонов. Характерный спектр, полученный при энергии протонов 1000 ± 2 кэВ, токе $2,6 \pm 0,3$ μ А, времени набора статистики 300 с и толщине слоя лития 30 μ м, представлен на рисунке 20. На спектре заметно, что в составе мишени присутствуют тяжелые примеси в виде кислорода и углерода. На рисунке также представлен результат моделирования спектра обратно отраженных протонов программой SIMNRA при заданной толщине основного слоя лития 30 μ м и 37 нм примесей, предположительно карбоната лития и оксида лития.

Толщину слоя, покрывающего литий, достаточно точно контролируют при изготовлении мишеней: она варьируется от 10 до 50 нм ($40 \cdot 10^{15}$ – $300 \cdot 10^{15}$ ат/см²).

Видно, что сигналы, обусловленные рассеянием протонов на кислороде и углероде, имеют вид отдельно стоящих узких пиков. Данное обстоятельство указывает на то, что слой примеси расположен на поверхности лития, либо внутри лития тонким слоем. Если бы кислород или углерод проникали в литий,

то протоны, рассеянные на этих атомных ядрах, теряли энергию, проходя слой лития, что приводило бы к уширению их энергетического спектра.

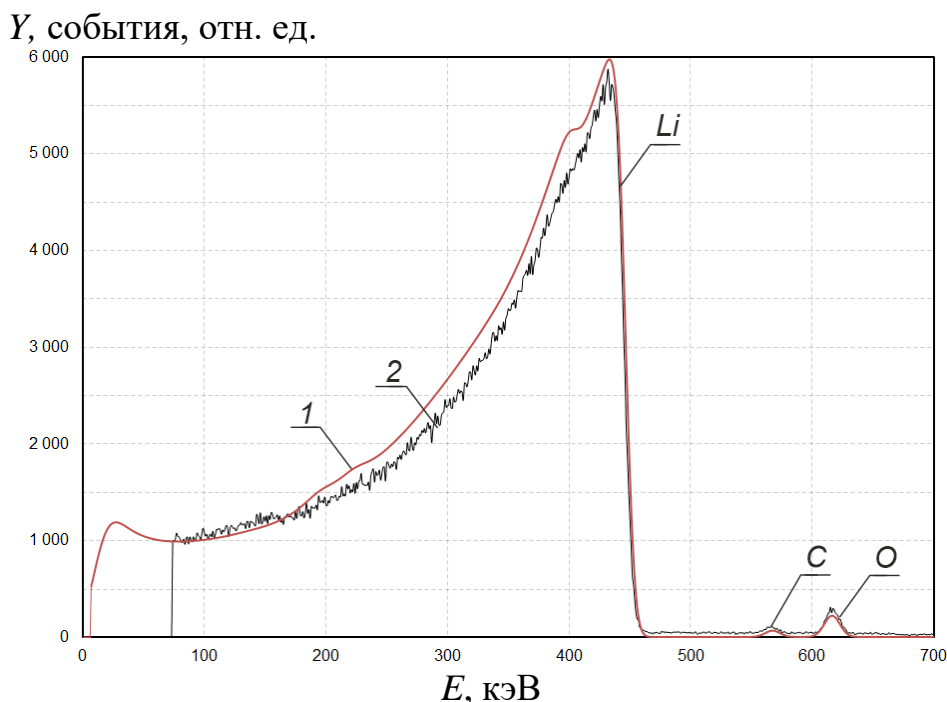


Рисунок 20 – Спектр обратно отраженных протонов для слоя свеженанпыленного лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 – экспериментальные данные, 2 – расчетные, полученные с помощью программы SIMNRA, Li – сигнал от протонов, отраженных от лития, С – от углерода, О – от кислорода

Исследование химического состава верхнего слоя мишени проведено методом рентгеноэлектронной спектроскопии. Суть метода заключается в облучении образца фотонами, которые поглощаются веществом, что сопровождается эмиссией электронов. Разным химическим соединениям соответствует разная энергия связи электронов. Таким образом, опираясь на измеренный спектр, можно определить химические соединения в образце на малой (~ 2 нм) глубине [137].

Для проведения исследования требовалось создать малый образец мишени с литиевым слоем. На медную подложку зажимами прикрепляли тонкую медную пластинку, после чего мишенный узел устанавливали на стенд напыления лития, и медь покрывали тонким (~ 70 мкм) литиевым слоем. Мишенный узел в условиях форвакуума перенесли в Институт неорганической химии СО РАН, где вскрыли на атмосферу. От медной пластинки, покрытой литием, отрезали часть размером

5 × 5 мм, которую поместили в камеру подготовки рентгеновского фотоэлектронного спектрометра FleXPS (SPECS) и закрепили в держателе образцов. При помощи транспортера образца медную пластинку переместили в вакуумную камеру (10^{-7} мбар) с рентгеновской трубкой, где ее облучили фотонами. Фотоны, взаимодействуя с веществом образца, выбивают электроны, которые вытягиваются магнитным полем в электронно-энергетический анализатор, точность измерения которого ~ 1 эВ. Результаты измерения представлены на рисунке 21. Сравнение измеренного энергетического спектра электронов с результатами, представленными в работе [137], позволяет однозначно утверждать, что поверхность мишени состоит из карбоната лития (Li_2CO_3).

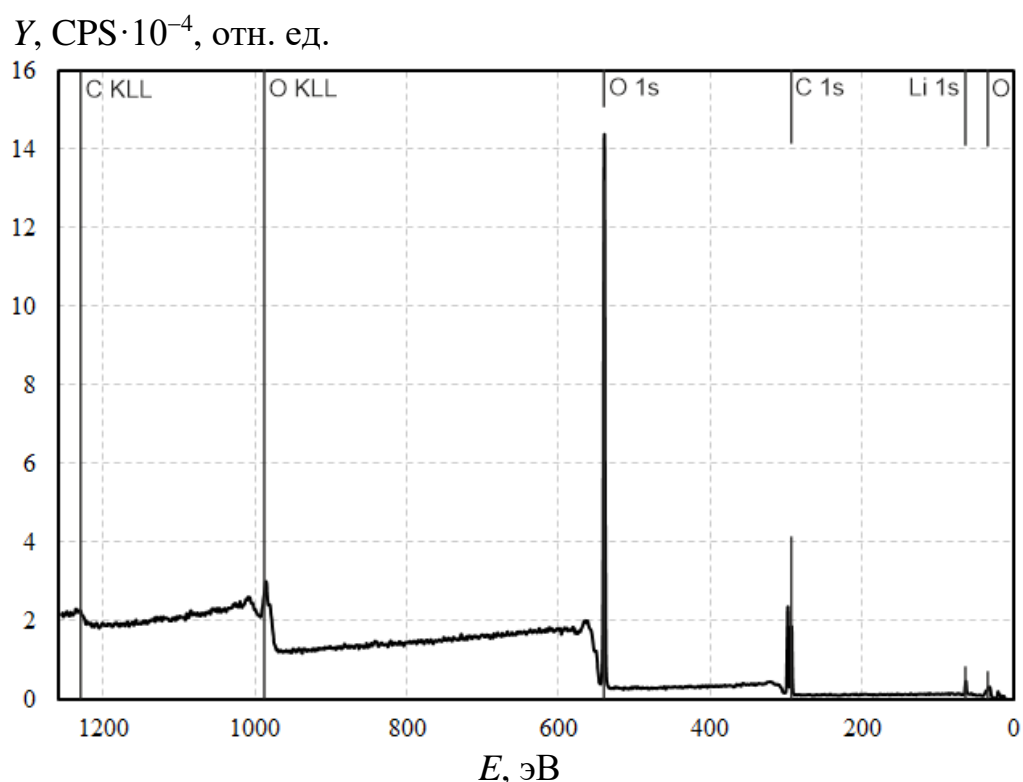


Рисунок 21 – Зависимость интенсивности пика CPS Y от энергии связи электронов E

Для доказательства того, что углерод находится на поверхности основного литиевого слоя, использован узкий резонанс в сечении упругого рассеяния протона на атомном ядре ^{12}C , представленном на рисунке 22 а. Видно, что углерод

очень эффективно рассеивает 1,74 МэВ протон и практически не рассеивает 1,69 МэВ протон. Подобный яркий резонанс присутствует исключительно в сечении упругого взаимодействия протона с углеродом, для сравнения на рисунке 22 б приведено сечение упругого рассеяния протона на ядре ^{16}O .

Варьируя энергию протонов от 1,6 МэВ до 1,75 МэВ, измеряют спектр потока обратно отраженных протонов на атомных ядрах углерода. Результаты измерений представлены на рисунке 23 и рисунке 24.

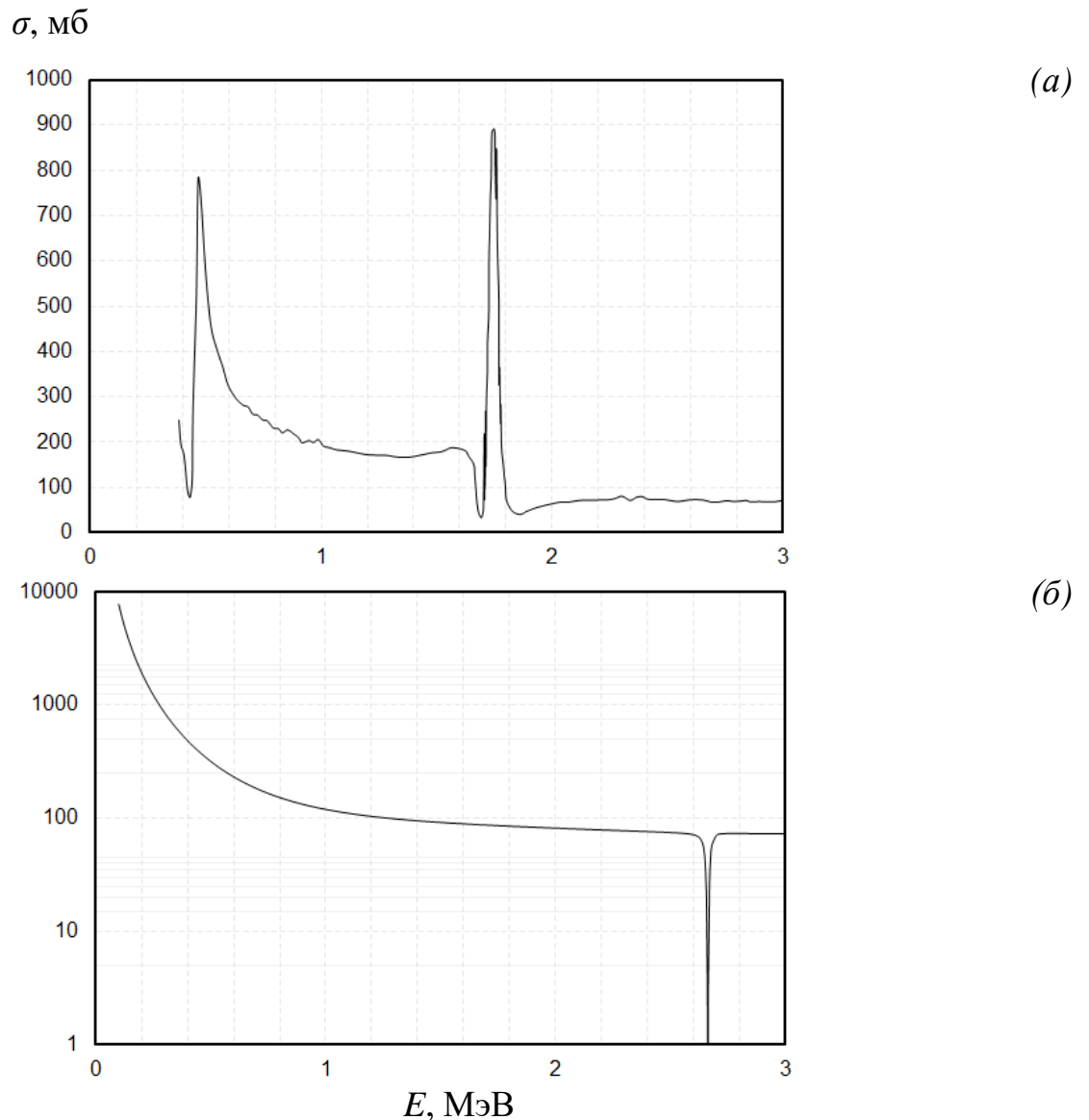


Рисунок 22 – Сечение упругого рассеяния протона на атомном ядре ^{12}C (а) и ^{16}O (б)

На рисунках 23 и 24 видно, что, если энергия протонов 1,74 МэВ, то сигнал углеродного пика максимален, если 1,69 МэВ – минимален. Это означает, что слой, содержащий атомные ядра углерода, находится на поверхности лития.

Если бы углерод был внутри лития, то рассеянному протону необходимо было бы потерять часть энергии на прохождение слоя лития, так что экстремумы в интенсивности сигнала были бы сдвинуты в область меньших энергий относительно экстремумов в сечении.

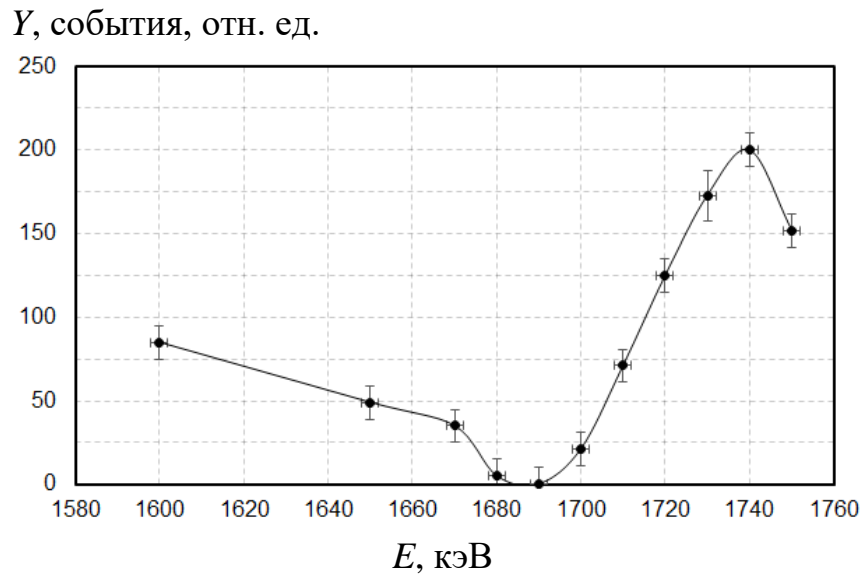


Рисунок 23 – Зависимость интенсивности пика углерода Y от энергии протонов E

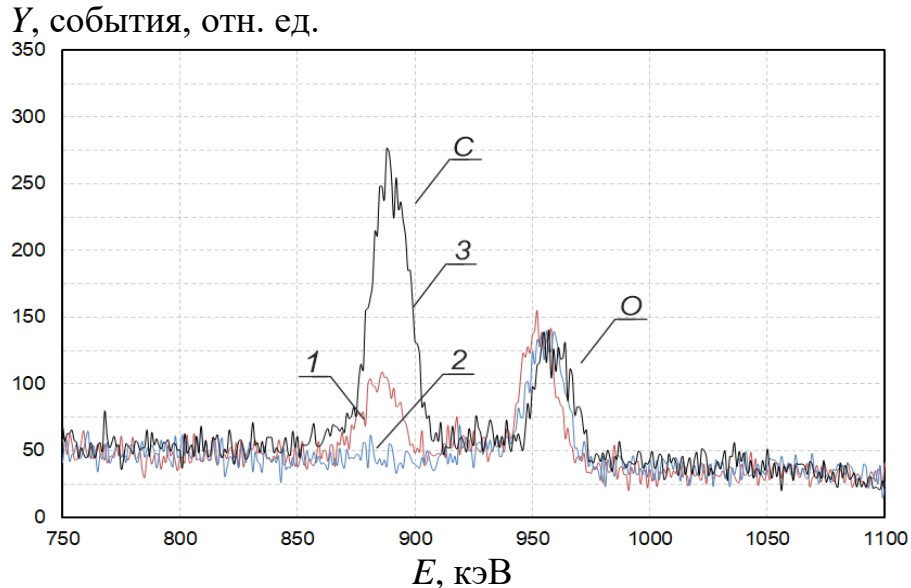


Рисунок 24 – Сигнал обратно отраженных протонов от углерода (C) и кислорода (O) при энергии протонов 1 (красным) – 1,65, 2 (синим) – 1,69 и 3 (черным) – 1,74 МэВ

Таким образом, установлено, что поверхность литиевого слоя при его напылении на стенде покрывается тонким слоем примесей, содержащим атомные ядра углерода, кислорода и лития.

Согласно паспортным данным, в используемом нами природном литии присутствует 0,044 % тяжелых примесей. На рисунке 25 представлен спектр обратно отраженных 1,75 МэВ протонов, на котором отчетливо видны сигналы протонов, отраженных от тяжелых примесей внутри слоя лития, а также продуктов ядерных реакций ${}^6\text{Li}(p, {}^3\text{He}){}^4\text{He}$ и ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$.

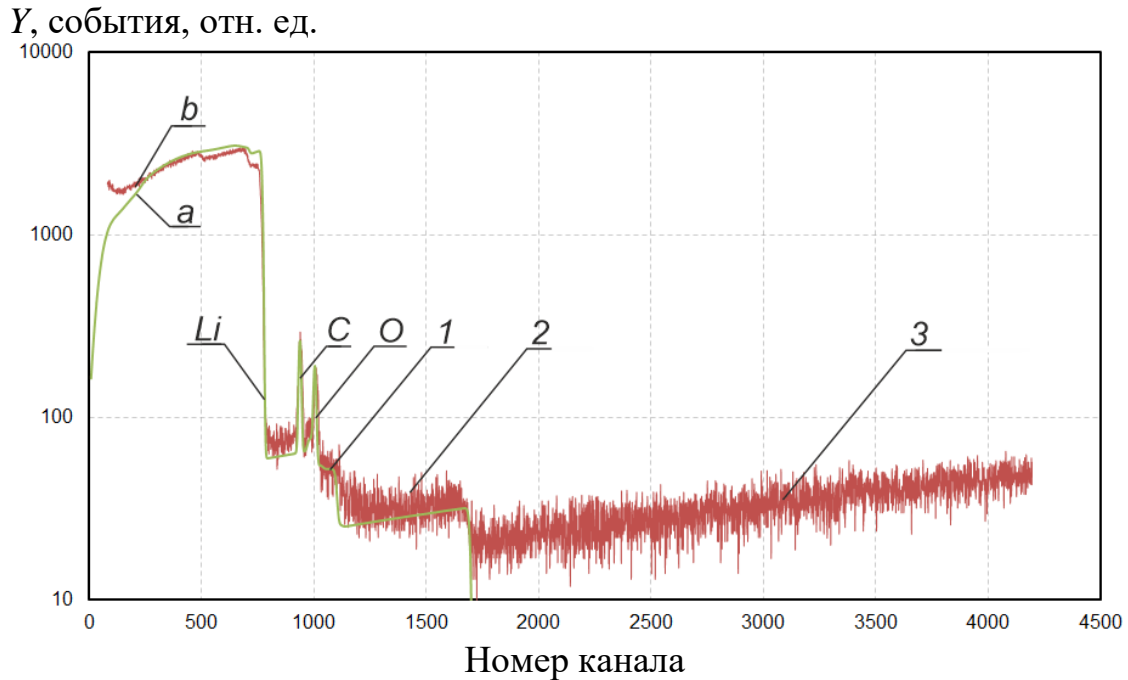


Рисунок 25 – Спектр, регистрируемый α -детектором при энергии падающих протонов 1,75 МэВ: *a* – результаты моделирования, *b* – экспериментальные данные. Li – сигнал обратно отраженных протонов от лития, C – от углерода, O – от кислорода, 1 – от тяжелых примесей в составе лития, 2 – продукты ядерной реакции ${}^6\text{Li}(p, {}^3\text{He}){}^4\text{He}$, 3 – продукты ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$

Обратим внимание на то, что в программе SIMNRA отсутствуют данные о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$, возможно, из-за того, что сечение, представленное в базе данных JENDL-4.0, примерно в два раза больше по величине сечений, представленных в базах данных ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019.

В измеренном спектре отчетливо видна ступенька, обусловленная тяжелыми примесями (1 на рисунке 25), которая хорошо моделируется программой SIMNRA, в предположении, что содержание примесей в литии соответствует паспортным данным.

3.4 Серия II. Исследование влияния воздуха на чистоту литиевого слоя

В воздушной среде литий быстрее вступает в реакцию с азотом, однако в спектре обратно отраженных протонов со свеженапыленного лития данный элемент не был обнаружен. Проведено дополнительное исследование по изучению накопления азота в литиевой мишени. Сразу после напыления лития мишенный узел с остаточным вакуумом $5 \cdot 10^{-3}$ Па был перенесен на установку. Литиевую мишень облучают пучком 1 МэВ протонов током 6 μ А и α -спектрометром измеряют спектр обратно отраженных протонов. После в мишенный узел напускают азот до давления 1 атм и оставляют на 10 мин, далее откачали азот и измеряют спектр обратно отраженных протонов. Такую же процедуру повторяют для 18 часов экспозиции азота в мишенном узле. Результаты измерений представлены на рисунке 26.

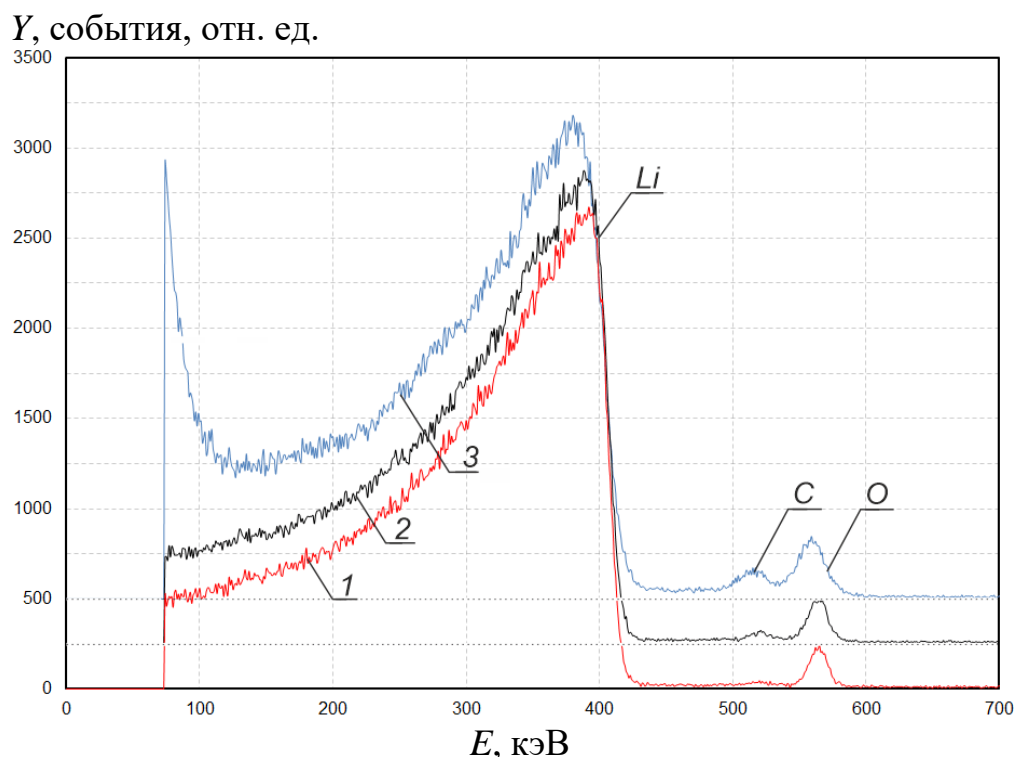


Рисунок 26 – Зависимость концентрации примесей от напуска азота, 1 – спектр обратно отраженных протонов от чистой мишени, 2 – после напуска азота на 10 минут, 3 – после напуска азота на 18 часов, Li – протоны, отраженные от лития, C – от углерода, O – от кислорода (для наглядности спектры 2 и 3 приподняты)

Видно, что присутствуют только сигналы от углерода и кислорода, сигнала от азота нет. Предположено, что пленка примесей на поверхности лития мешает азоту взаимодействовать с литием. Отсутствие азота в литиевой мишени подтверждает также результат измерения энергетического спектра продуктов ядерных реакций при облучении тонкой литиевой мишени пучком дейтронов. На рисунке 27 представлен измеренный спектр заряженных частиц при энергии дейтронов 0,4 МэВ. На нем видны дейтроны, отразившиеся от медной подложки (1), α -частицы из реакции $^{16}\text{O}(d,\alpha)^{14}\text{N}$ (2), протоны из реакций $^6\text{Li}(d,p_1)^7\text{Li}^*$ (3) и $^6\text{Li}(d,p_0)^7\text{Li}$ (4), α -частицы из реакции $^7\text{Li}(d,n\alpha)^4\text{He}$ и при распаде образующегося ^5He (5), из реакции $^7\text{Li}(d,\alpha)^5\text{He}$ (6) и реакции $^6\text{Li}(d,\alpha)^4\text{He}$ (7), и полностью отсутствуют протоны как продукты реакции $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$, если бы азот был в литиевой мишени (на рисунке 27 место пика протонов из реакции $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$ отмечено стрелкой).

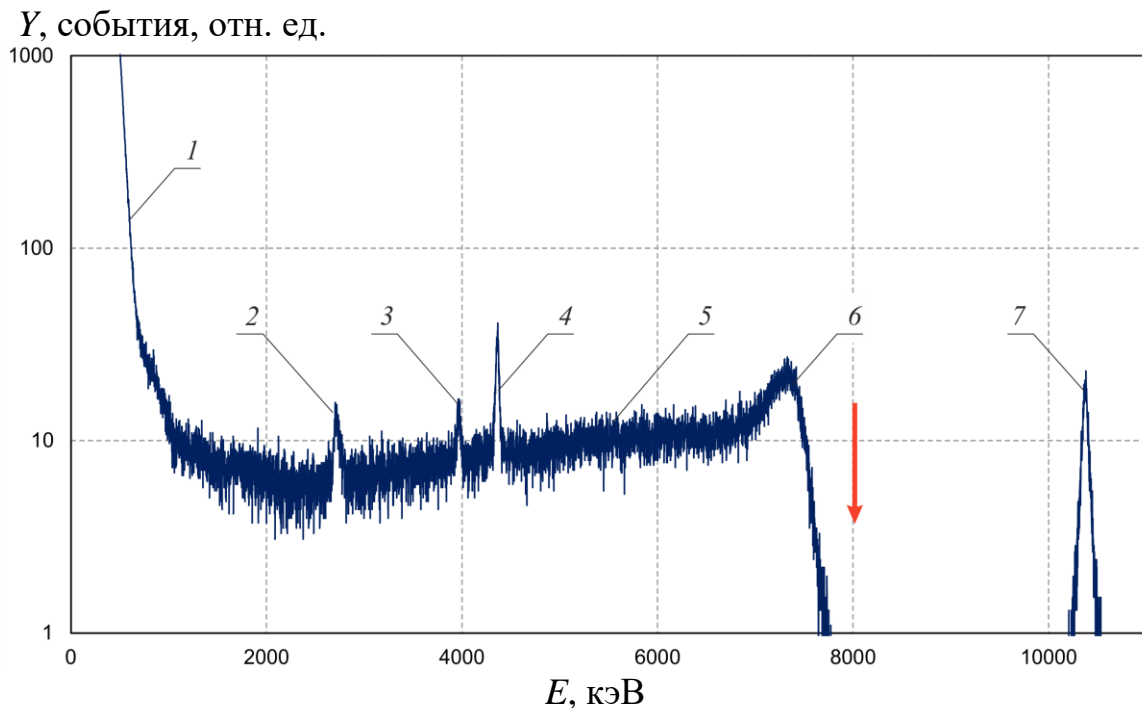


Рисунок 27 – Энергетический спектр заряженных частиц, регистрируемый α -спектрометром под углом 135° при облучении литиевой мишени 0,4 МэВ дейтронами: 1 – отраженные от мишени дейтроны, 2 – продукты реакции $^{16}\text{O}(d,\alpha)^{14}\text{N}$, 3 – $^6\text{Li}(d,p_1)^7\text{Li}^*$, 4 – $^6\text{Li}(d,p_0)^7\text{Li}$, 5 – $^7\text{Li}(d,n\alpha)^4\text{He}$ и распада образующегося ^5He , 6 – $^7\text{Li}(d,\alpha)^5\text{He}$, 7 – $^6\text{Li}(d,\alpha)^4\text{He}$. Стрелкой указано место расположения протонов как продуктов реакции $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$

Наблюдая отсутствие реакции литиевой мишени с азотом, изучили устойчивость мишени к атмосферному воздуху. Измерение спектра проводили сразу после напыления лития с сохранением вакуума в мишенном узле $\leq 10^{-3}$ Па. Затем в мишенный узел напустили воздух и откачали его через 1 минуту, после чего вновь проводили измерения α -спектрометром. Эксперимент повторили для времени экспозиции на воздухе: 10 минут, 1 час, 24 часа, неделя. Температуру и влажность воздуха контролировали датчиком температуры и влажности ДНТ11, температура воздуха равна 23 ± 1 °С, влажность 50 ± 20 %. Результаты измерения представлены на рисунке 28.

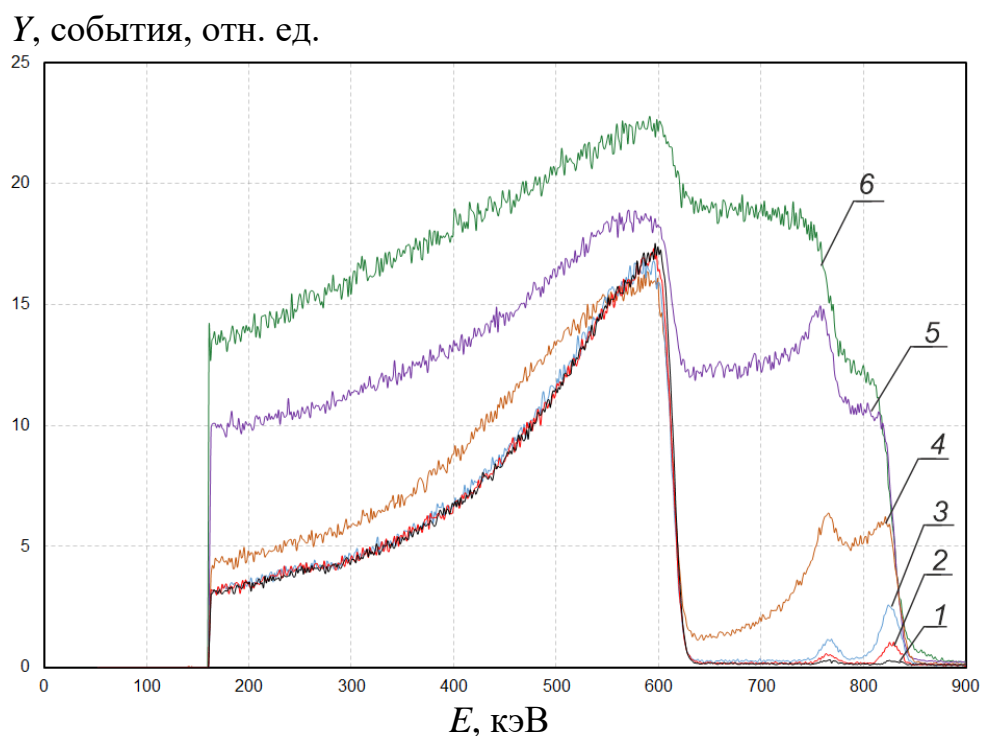


Рисунок 28 – Спектры литиевой мишени, регистрируемые α -спектрометром при облучении 1 МэВ протонами. Время экспозиции на воздухе: 1 – 0 мин, 2 – 1 мин, 3 – 10 мин, 4 – 1 час, 5 – 24 часа, 6 – неделя

Анализируя спектры, можно заметить, что с увеличением времени экспозиции на воздухе накапливается и кислород, и углерод. Чем дольше мишень контактирует с воздухом, тем большее количество кислорода и углерода оседает на поверхности, причем скорость накопления кислорода выше. Со временем спектр протонов, отраженных от кислорода, становится более пологим. Это

означает, что кислород начинает углубляться в материал мишени. Количество углерода к концу эксперимента возросло в 25 раз, а кислорода в 1300 раз. Такое накопление примесей приводит к существенному уменьшению выхода нейтронов, т.е. делает мишень непригодной к эксплуатации.

Аналогичный эксперимент проведен зимой, когда на улице отрицательная температура и в помещении включено отопление, так что влажность воздуха составляет 10 %. Результат, представленный на рисунках 29–31, отличается кардинально – длительная экспозиция литиевой мишени на воздухе не приводит к существенному накоплению примесей. На рисунке 29 видно, что в течение дня нахождения на воздухе происходит незначительное накопление примесей на поверхности лития и только через неделю – значительное. Данные, представленные на рисунке 30 и рисунке 31, подтверждают, что в течение суток накопление кислорода и углерода происходит только на поверхности лития, а через неделю кислород проник внутрь литиевого слоя.

Y , события, отн. ед.

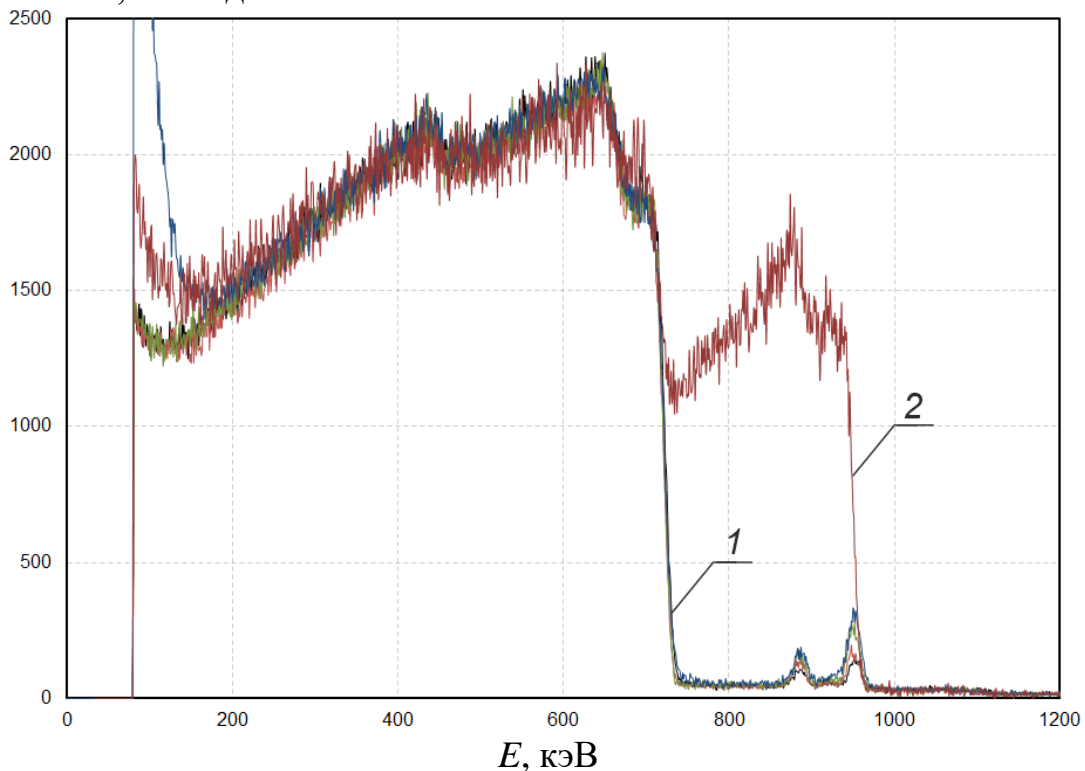
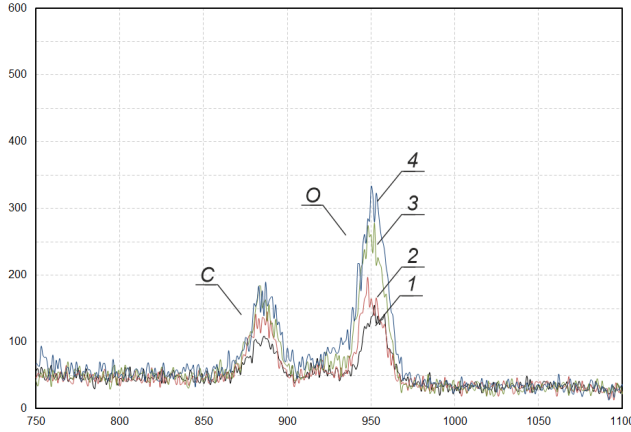


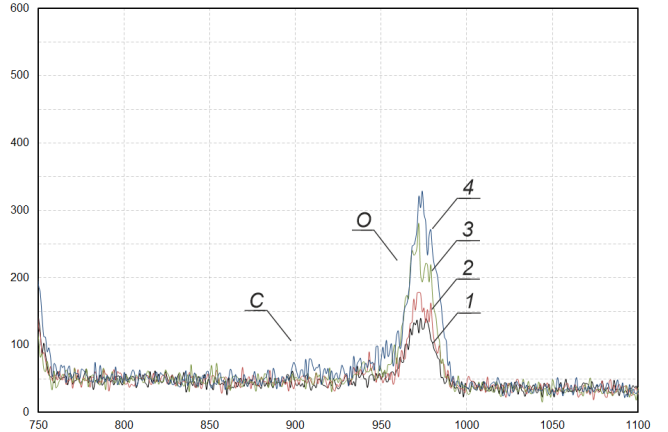
Рисунок 29 – Спектры литиевой мишени, регистрируемые α -спектрометром при облучении 1,65 МэВ протонами. Время экспозиции на воздухе: 1 – сутки и менее, 2 – неделя

Y , события, отн. ед.



(a)

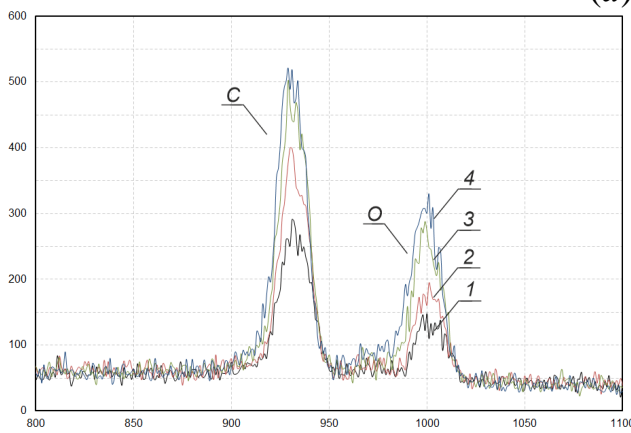
Y , события, отн. ед.



(б)

E , кэВ

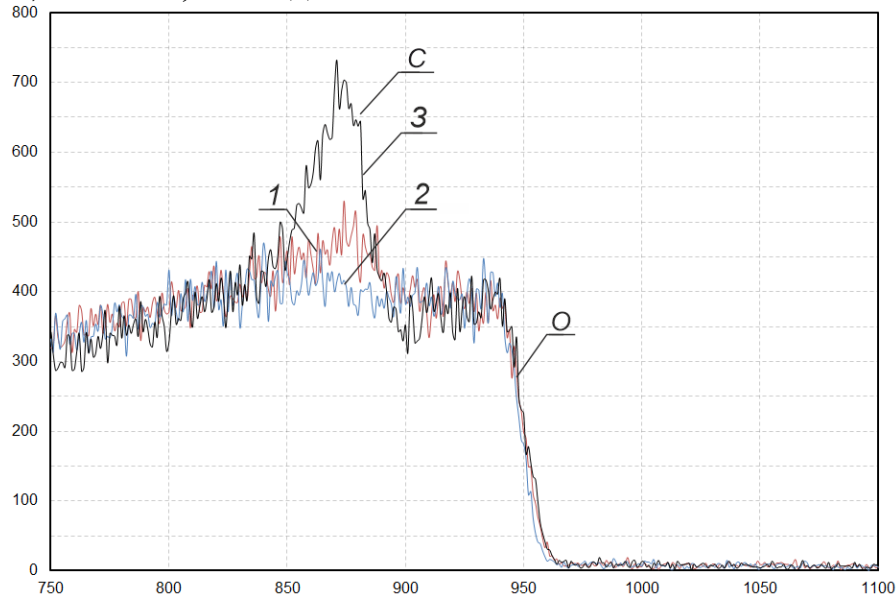
Рисунок 30 – Спектры литиевой мишени, регистрируемые α -спектрометром при облучении: *a* – 1,65, *б* – 1,69, *в* – 1,74 МэВ протонами. Время экспозиции на воздухе: 1 – 0 мин, 2 – 10 мин, 3 – 40 мин, 4 – 20 ч



E , кэВ

(в)

Y , события, отн. ед.



E , кэВ

Рисунок 31 – Спектры литиевой мишени, регистрируемые α -спектрометром при облучении протонами с энергией: 1 – 1,65, 2 – 1,69, 3 – 1,74 МэВ после недели экспозиции мишени на воздухе. С – протоны, отраженные от углерода, О – от кислорода

Обработка экспериментальных результатов позволяет установить, что через 20 ч нахождения литиевой мишени на воздухе с низкой влажностью толщина слоя примесей увеличилась с 35 до 145 нм. Такое накопление примесей практически не влияет на выход нейтронов. Следовательно, кратковременная экспозиция литиевой мишени на сухом воздухе не ухудшает ее нейтроногенерирующие свойства, что может быть учтено при разработке технологии поставки литиевых мишеней от производителя потребителю.

Конечно, длительная экспозиция литиевой мишени на сухом воздухе приводит к существенному накоплению примесей, ухудшающих ее нейтроногенерирующие свойства. В частности, в данном эксперименте через неделю толщина слоя примесей увеличилась до 2250 нм.

3.5 Серия III. Исследование чистоты литиевого слоя при облучении пучком протонов

Мишень с толщиной лития ~ 30 мкм в течение четырех дней облучали пучком протонов с энергией 2 МэВ, 1 мА, плотностью мощности 1,1 кВт/см² и измеряли элементный состав мишени α -спектрометром до и после облучения. Результаты представлены на рисунке 32. Видно, что количество кислорода и углерода растет во время облучения и выходит на насыщение. Содержание углерода на поверхности мишени увеличилось в 4 раза: с $(10 \pm 5) \cdot 10^{15}$ ат/см² до $(40 \pm 20) \cdot 10^{15}$ ат/см², кислорода в 5 раз: с $(80 \pm 40) \cdot 10^{15}$ ат/см² до $(400 \pm 200) \cdot 10^{15}$ ат/см². Такая точность обусловлена тем, что при разной энергии протонов получается разная концентрация примесей, что может быть связано с неточными данными о сечениях, заложенных в программу SIMNRA. Наличие примесей уменьшает выход нейтронов на 0,86 % (0,06 % – углерод, 0,8 % – кислород). Накопленные примеси слабо влияют на выход нейтронов.

Более того, они служат для литиевой мишени защитной пленкой от проникновения, например, азота.

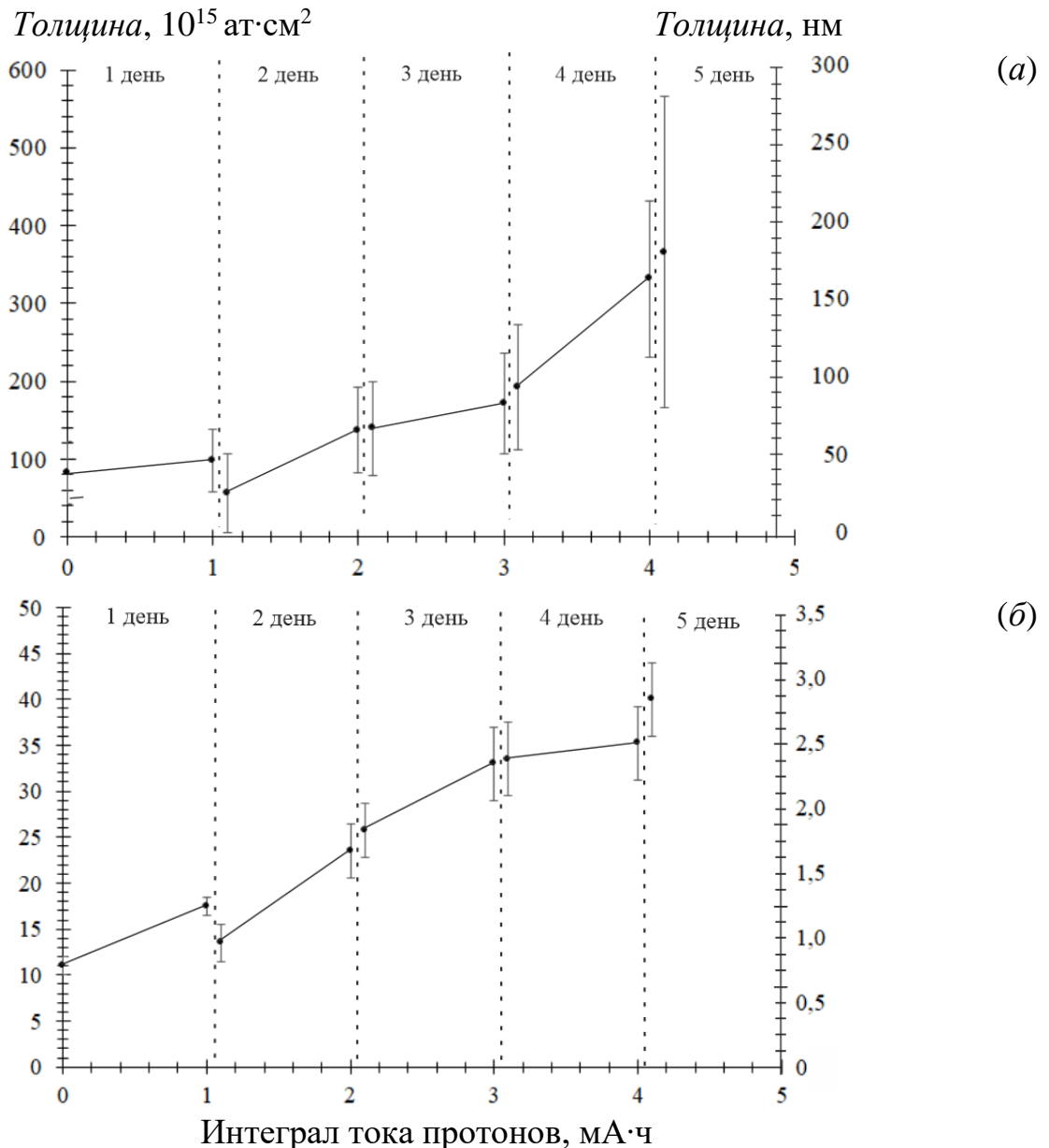


Рисунок 32 – (а) – зависимость концентрации кислорода от интеграла тока, (б) – зависимость концентрации углерода от интеграла тока

В продолжение эксперимента провели облучение мишени при повышенной плотности мощности протонного пучка $3,4 \text{ кВт/см}^2$ (1,8 МэВ, 1,5 мА) в течение 3,5 ч. При такой плотности мощности пучка температура медной подложки мишени, измеренная термосопротивлением, составила $240 \text{ }^\circ\text{C}$, и литий под пучком стал жидким (температура плавления лития равна $182 \text{ }^\circ\text{C}$). Хотя поверхность

литиевой мишени располагается вертикально, литий не стекает. Наблюдение за поверхностью мишени с помощью видеокамеры позволяет предположить, что, конечно, литий стал жидким, но он оказался заключен между медной подложкой мишени и твердым слоем карбоната лития. Дальнейшее увеличение плотности мощности приводит к прорыву пленки примесей, и поверхность лития становится жидкой, как это было отмечено в работе [138] при диагностировании профиля пучка протонов с увеличением плотности мощности от 2,6 до 6,8 кВт/см² и в работе [128] при изучении диффузии лития в медную подложку мишени при плотности мощности 8 кВт/см². Энергетический спектр обратно отраженных протонов перед облучением мишени пучком протонов с плотностью мощности 3,4 кВт/см² и после представлен на рисунке 33.

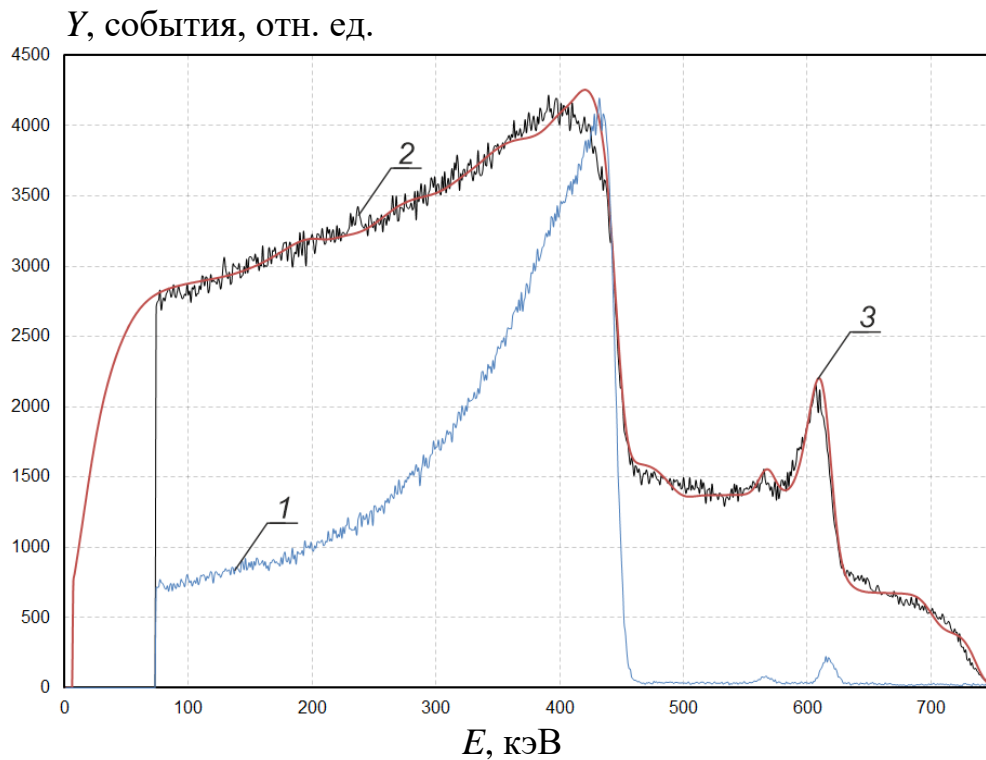


Рисунок 33 – Спектр обратно отраженных протонов для слоя чистого лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 – сигнал обратно отраженных протонов от чистой мишени, 2 – сигнал обратно отраженных протонов от мишени после облучения пучком протонов с мощностью 3,4 кВт/см², 3 – моделирование, построенное в программе SIMNRA

Помимо сигналов от лития, углерода и кислорода, здесь появился сигнал от более тяжелой примеси. Вероятнее всего, это чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга меди при имплантации протонов [128] и поднятые с поверхности медной подложки конвекцией жидкого лития. В данном случае содержание меди в литии оценивается величиной $(100 \pm 50) 10^{15}$ ат/см². Хотя такое содержание уменьшает выход нейтронов на 0,8 %, но оно не вышло на насыщение. Дальнейшее облучение мишени пучком протонов с такой мощностью будет приводить к накоплению меди внутри лития и снижать выход нейтронов, делая мишень непригодной к эксплуатации.

3.6 Выводы

Для генерации нейтронов применяют тонкую литиевую мишень, в которой нейтроногенерирующий слой металлического лития толщиной от 30 до 100 мкм термически напыляют в вакууме на охлаждаемую медную подложку. Методом спектроскопии ионного рассеяния установлено следующее.

1. При термическом напылении лития в вакууме на медную подложку формируемый слой лития покрывается пленкой толщиной от 10 до 50 нм, содержащей литий, кислород ($40 \cdot 10^{15} - 300 \cdot 10^{15}$ ат/см²) и углерод ($5 \cdot 10^{15} - 20 \cdot 10^{15}$ ат/см²).

2. Образовавшаяся при напылении лития пленка, содержащая литий, кислород и углерод, защищает его от взаимодействия с сухим воздухом.

3. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см² пленка, содержащая литий, кислород и углерод, увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

4. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности выше 3 кВт/см² слой лития становится жидким, и в него

проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

Полученные знания представляются полезными для разработки технологии поставки литиевой мишени от производителя потребителю и для определения ресурса литиевой мишени.

Результаты проведенных исследований представлены и обсуждены на 9-й Международной конференции по компактным ускорительным источникам нейтронов (Япония, 2022) [15], на 11-й Международной молодежной школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (виртуальный конгресс, 2022) [17, 18] и опубликованы в научных журналах [23, 25].

Глава 4. Измерение сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

В Главе 4 обращено внимание на имеющиеся противоречивые данные о сечении ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ и приведены результаты проведенного измерения сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$, в котором особое внимание уделено достоверности измерения толщины лития.

4.1 Данные о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

Реакция ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ характеризуется высоким выходом энергии – 17,34 МэВ и является одной из термоядерных реакций, участвующих в звездном цикле синтеза тяжелых элементов во Вселенной [139].

В ходе реакции взаимодействия протона с литием-7 образуется промежуточное ядро ${}^8\text{Be}^*$ с определенным моментом количества движения и знаком четности [83]. При четных значениях момента и положительной четности промежуточного ядра разрешен распад на две α -частицы, при других значениях возможен распад на бериллий-8 и фотон. Четность системы из двух частиц $a + A$ (P_{a+A}) определяется орбитальным моментом l как $P_{a+A} = P_a \cdot P_A \cdot (-1)^l$. Значения момента движения получаются путем сложения спина ядра лития ($3/2$), спина протона ($1/2$) и орбитального момента протона l .

Рассмотрим простую ситуацию, которая соответствует низким энергиям протона (~ 2 МэВ). Известно, что система из двух α -частиц обладает положительной четностью, а спин α -частицы равен 0. Орбитальный момент α -частиц может принимать значение 0 или 2, значение 1 в данном случае невозможно в силу симметричности системы. Уточним, что протоны с орбитальным моментом выше 2 не смогут преодолеть центробежный барьер. Рассмотрим какие значения принимает момент движения (J) для простейших

случаев $l = 0$ и $l = 1$. Для орбитального момента протона $l = 0$ значения момента движения равны $J = 3/2 + 1/2 + 0 = 2; 1$, а для орбитального момента протона $l = 1$ получим $J = 3/2 + 1/2 + 1 = 3; 2; 1; 0$.

Исходя из законов сохранения четности и момента движения, получим, что для реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ возможны только состояния системы 0^+ либо 2^+ . При данных значениях момента полное угловое распределение α -частиц является изотропным. Уточним также, что при такой малой энергии протонов, наиболее вероятным состоянием системы из двух α -частиц будет 0^+ , при повышении энергии протонов с определенного момента станет преобладать состояние 2^+ , а также возникнет интерференция между двумя данными состояниями, что вызовет неизотропность.

Реакция ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ также сопровождается генерацией нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, которую используют в ряде ускорительных источников нейтронов [140] для бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей [1, 2, 141]. Знание сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$, безусловно, важно для оценки ядерных данных. К сожалению, существующие наборы данных о поперечных сечениях в литературе во многих случаях противоречивы [57, 142–154].

Данные о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ приведены на рисунке 34, данные о дифференциальном сечении этой реакции приведены на рисунке 35. Видно, что данные разных авторов и даже данные из разных баз значительно отличаются друг от друга, и непонятно, какие данные следует считать достоверными. Цель исследования состояла в измерении сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

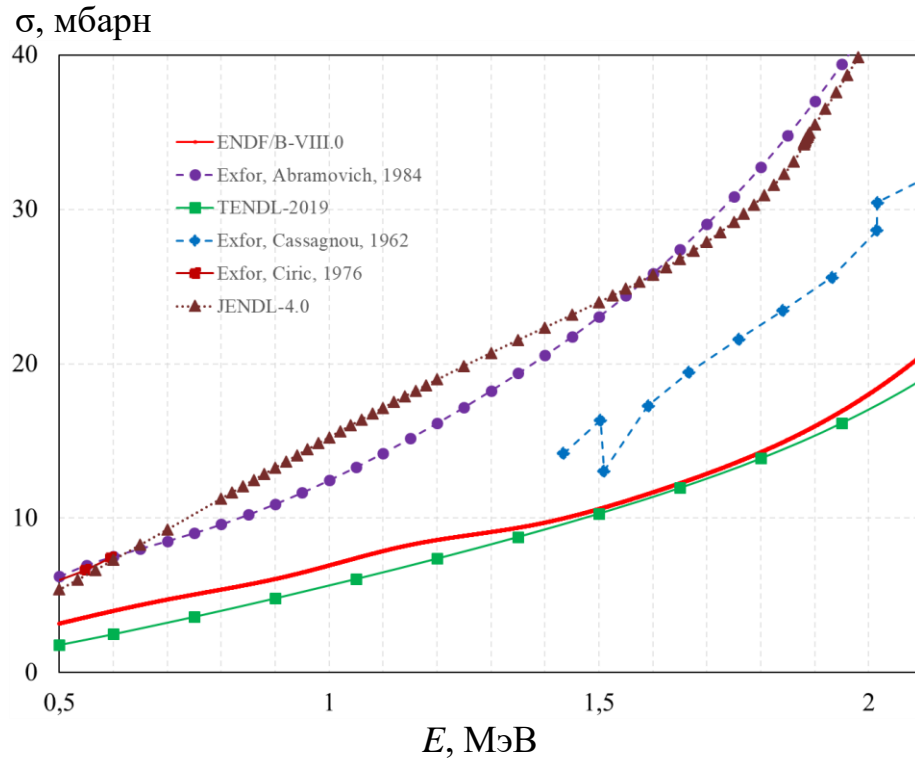


Рисунок 34 – Данные о сечении реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$, представленные в Java-based программном обеспечении ядерной информации JANIS v.3.0 [57]

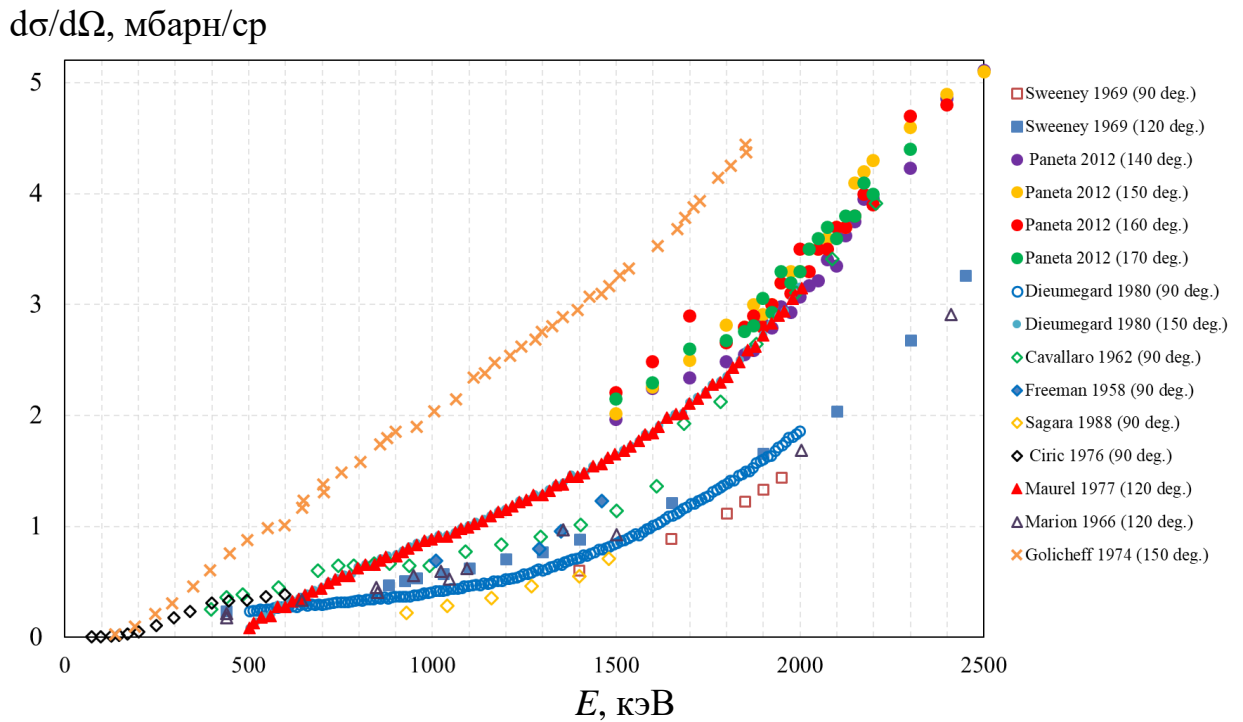


Рисунок 35 – Дифференциальное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

4.2 Схема проведения экспериментального исследования

Схема экспериментальной установки представлена на рисунке 36. В ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией *1* получают пучок протонов и направляют его на литиевую мишень *б*. Энергию протонного пучка можно варьировать в диапазоне 0,6–2 МэВ, сохраняя высокую энергетическую стабильность 0,1 %. Ток пучка также можно изменять в диапазоне от 0,5 до 10 мА, обеспечивая его стабильность 0,4 %. На выходе из ускорителя пучок протонов имеет поперечный размер 10 мм, угловую расходимость до $\pm 1,5$ мрад и нормированный эмиттанс 0,2 мм·мрад [136]. Ток протонного пучка измеряют и контролируют бесконтактным датчиком тока NPCT (Bergoz Instrumentation, Франция) *2*.

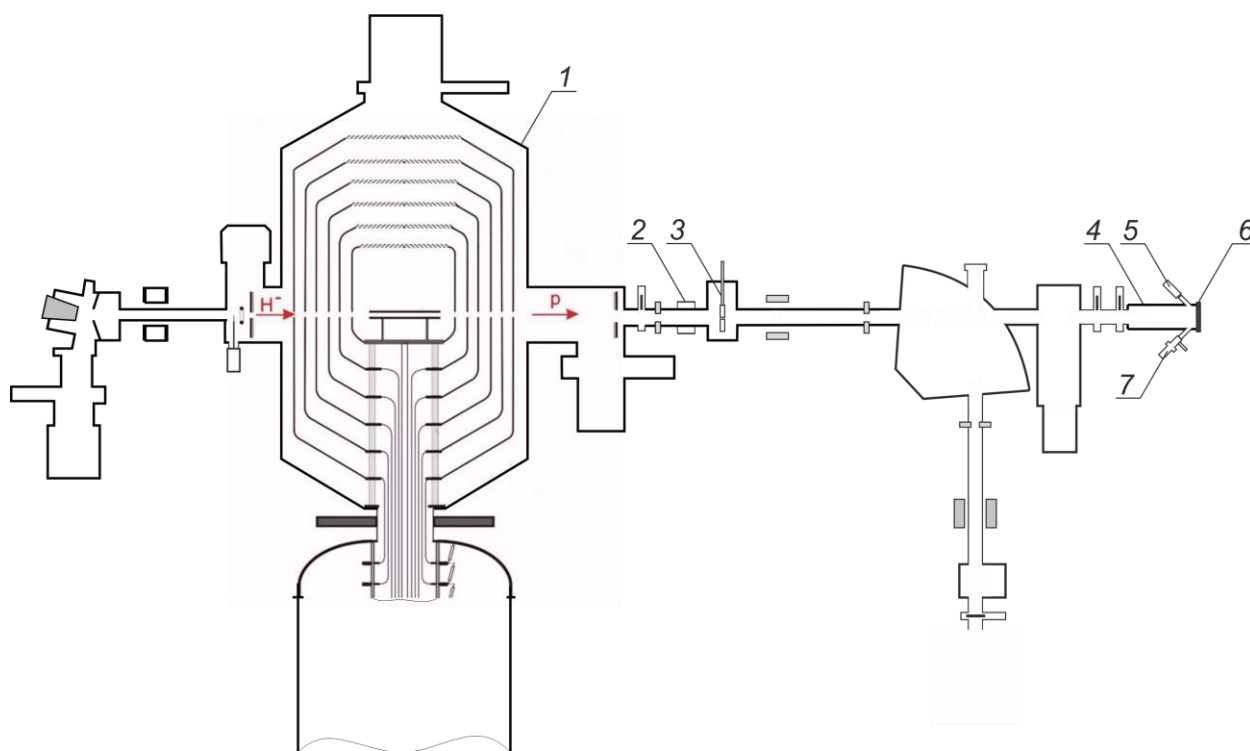


Рисунок 36 – Схема экспериментальной установки: *1* – тандемный ускоритель с вакуумной изоляцией, *2* – неразрушающий трансформатор постоянного тока, *3* – коллиматор, *4* – мишень в сборе, *5* – видеокамера, *6* – литиевая мишень, *7* – α -спектрометр

Для проведения исследований ток пучка протонов на мишени уменьшают до величины менее 1,5 мкА размещением на его пути охлаждаемого коллиматора 2, расположенного в 4 м от мишени. Коллиматор представляет собой медный прямоугольный параллелепипед толщиной 16 мм со сторонами 64 × 64 мм. В центре диафрагмы создается отверстие диаметром 1 мм, и с обеих сторон делается зенковка диаметром 10 мм. Внутри диафрагмы выполнены каналы диаметром 10 мм для водяного охлаждения. Охлаждающая вода поступает в диафрагму и выходит из нее по металлическим трубкам, впаянным в диафрагму. Диафрагма крепится к трехмерному подвижному входу TTX100-100-200-YZS (UHV Design) и может перемещаться в плоскости, ортогональной направлению распространения протонного пучка.

Положение и размер пучка протонов на мишени контролируют видеокамерой Hikvision 5, регистрирующей люминесценцию лития под действием протонов [155]. Ток протонного пучка, попадающего на литиевую мишень, измеряют резистивным делителем напряжения, используя мишенный узел 4, электрически изолированный от установки, как глубокий цилиндр Фарадея.

Для измерения сечения реакции на медную подложку мишени напыляют слой лития толщиной ~ 0,5 мкм. Напыление лития на мишень осуществляют на отдельном стенде. После напыления лития мишенный узел 4 закрывают шибером для сохранения вакуума внутри, отсоединяют от стенда напыления лития, переносят на установку и подключают к горизонтальному тракту протонного пучка (рисунок 37).

Интенсивность и энергию α -частиц в реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ измеряют α -спектрометром 7 с кремниевым полупроводниковым детектором ПДПА-1К (ИФТП, Дубна, Россия) [135]. Площадь чувствительной поверхности детектора $S = 20 \pm 1 \text{ мм}^2$, энергетическое разрешение – 12 кэВ, энергетический эквивалент шума – 7 кэВ, емкость – 30 пФ, толщина входного окна – 0,08 мкм, стандартный естественный фон в диапазоне 3 – 8 МэВ – 0,15 имп/(см²·ч).

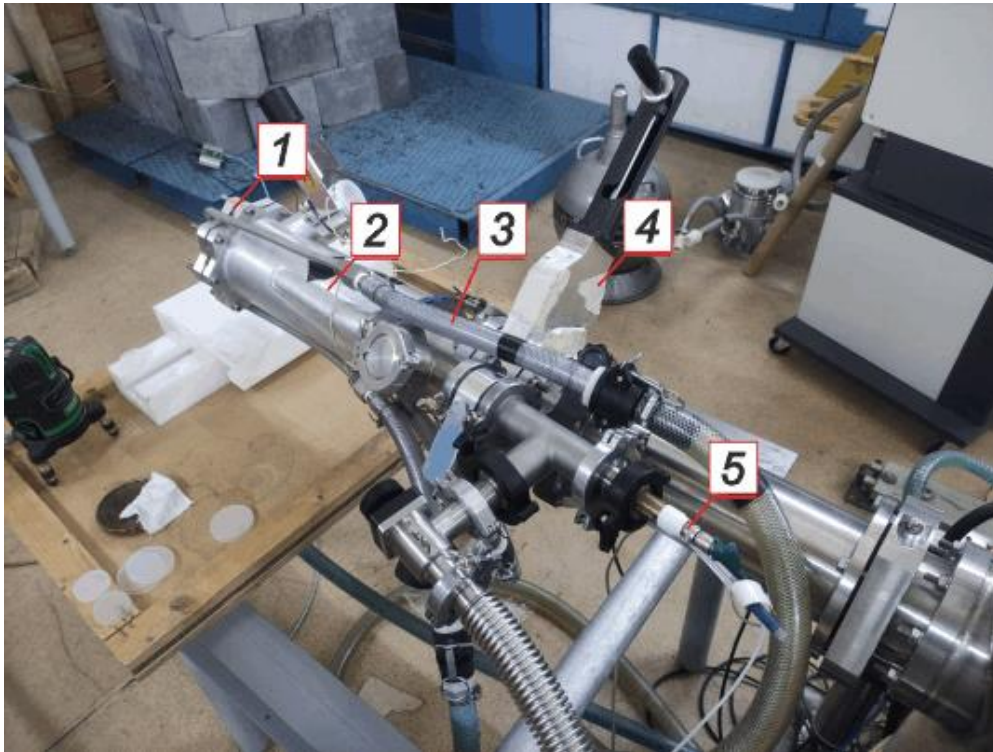


Рисунок 37 – Горизонтальный тракт протонного пучка с мишенным узлом: 1 – литиевая мишень, 2 – мишенный узел, 3 – подача охлаждения, 4 – шибер, 5 – α -спектрометр

При измерении сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ чувствительную часть α -спектрометра располагают на расстоянии $R = 516$ мм от мишени под углом $168 \pm 0,5^\circ$ к импульсу протона. Телесный угол составляет $\Omega_{\text{lab}} = S/R^2 = 7,511 \cdot 10^{-5}$ ср.

4.3 Результаты измерения и их обсуждение

Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ измерено следующим образом. В течение определенного времени t пучком протонов с током i облучают слой лития толщиной l и α -спектрометром регистрируют α -частицы, вылетающие в телесный угол Ω под углом $168 \pm 0,5^\circ$ к импульсу протонов. Дифференциальное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ рассчитывают по формуле

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{eY}{2knl\Phi\Omega_{\text{lab}}}, \quad (4.1)$$

где e – заряд электрона, Y – экспериментально измеренный выход α -частиц (количество α -частиц в пике), коэффициент 2 указывает, что продуктами данной реакции являются две α -частицы, k – эффективность регистрации спектрометром α -частиц, n – ядерная плотность атомных ядер ${}^7\text{Li}$, l – толщина литиевого слоя, Φ – флюенс протонов, Ω_{lab} – телесный угол.

Отношение дифференциального сечения в системе центра масс $\frac{d\sigma_{\text{ЦМ}}}{d\Omega_{\text{ЦМ}}}$ к дифференциальному сечению в лабораторной системе координат $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ дается следующим выражением [156]:

$$\frac{d\sigma_{\text{ЦМ}}}{d\Omega_{\text{ЦМ}}} = \frac{|1 + \beta \cos \theta|}{(1 + \beta^2 + 2\beta \cos \theta)^{\frac{3}{2}}} \frac{d\sigma}{d\Omega'}, \quad (4.2)$$

где $\beta = \sqrt{\frac{m_p \tilde{M}}{M_B M} \cdot \frac{T_M}{T_M + Q}}$ и $T_M = E_p \frac{M}{(m_p + M)}$, M , \tilde{M} – массы частиц после распада, в этом случае массы α -частиц, m_p – масса протона, M_B – масса частиц мишени, в этом случае масса лития, θ – угол регистрации частиц в лабораторной системе координат, в этом случае 168° , Q – энергетический выход реакции, E_p – кинетическая энергия налетающего протона.

Для удобства введем коэффициент G , связывающий системы координат:

$$G = \frac{|1 + \beta \cos \theta|}{(1 + \beta^2 + 2\beta \cos \theta)^{\frac{3}{2}}}. \quad (4.3)$$

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

$$\sigma = 4\pi G \frac{d\sigma}{d\Omega}. \quad (4.4)$$

Если излучение неизотропно, то необходимо измерить зависимость дифференциального сечения от угла и проинтегрировать по углу.

Видно, что для измерения сечения необходимо знать эффективность детектирования α -спектрометра, телесный угол, толщину литиевого слоя, ядерную плотность ${}^7\text{Li}$ в литиевом слое, коэффициент G , флюенс протонов и изотропность излучения.

Телесный угол равен $\Omega_{\text{lab}} = S/R^2 = 7,511 \cdot 10^{-5}$ ср, где $S = 20 \pm 1$ мм² (согласно паспортным данным на детектор кремниевый спектрометрический α -излучения; регистрационный номер 15264-96), $R = 516 \pm 1$ мм. Точность измерения телесного угла определяется погрешностью измерения площади детектора спектрометра и составляет 5 %.

Эффективность регистрации α -частиц считаем равной 100 %. Спектрометр α -излучения откалиброван двумя эталонными источниками излучения на основе радионуклида плутоний-239 с активностью $4,01 \cdot 10^5$ Бк (паспорт № 6887, маркировка 7165, 2П9-405.85, дата выпуска 12.09.1985) и $1,21 \cdot 10^5$ Бк (паспорт № 6882, маркировка 7160 1П9-105.85, дата выпуска 12.09.1985). Доверительные границы суммарной погрешности результата измерения активности каждого из двух источников указаны в паспортах равными 19 %. Для определения эффективности регистрации α -спектрометра эталонные источники излучения размещают на расстоянии 102,8 мм от поверхности детектора и измеряют их активность. Измеренные активности источников составили $4,16 \cdot 10^5$ Бк и $1,22 \cdot 10^5$ Бк – на 4 и 1,5 % больше паспортных; они соответствуют паспортным значениям в границах погрешности. Поскольку измеренные значения активности источников соответствуют паспортным, и эталонные источники излучения независимые, то проведенная калибровка подтверждает предположение о том, что эффективность регистрации α -частиц детектором можно считать равной 100 %, т.е. $k = 1$.

Калибровка спектрометра по энергии проведена образцовым спектрометрическим α -источником с изотопом ^{226}Ra (паспорт № 425/331/10692-А, 21.10.1977) активностью $3,84 \cdot 10^4$ Бк, характеризующимся энергиями α -частиц основных переходов 4748, 5453, 5966 и 7651 кэВ. Установлено, что зависимость энергии E от номера канала N линейная и описывается выражением $E [\text{keV}] = 1,3578 N + 65,321$.

Определим плотность атомных ядер литий-7 в литиевом слое n . Ранее установлено, что плотность напыленного слоя лития соответствует плотности металлического лития, равной $0,54 \text{ г/см}^3$ [157]. Взяв молярную массу лития $6,997 \text{ г/моль}$ и плотность лития $0,54 \text{ г/см}^3$, получим объем одного моля лития равным $13,1 \text{ см}^3$. Разделив число Авогадро ($6,022 \cdot 10^{23} \text{ моль}^{-1}$) на объем одного моля вещества, получим плотность атомных ядер лития, равную $4,596 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$. Для напыления используем природный литий производства Новосибирского завода химконцентратов (Новосибирск, Россия), в котором, согласно паспорту, содержится 99,956 % лития. Содержание лития-7 в природном литии варьируется от 92,41 % [130] до 92,58 % [131], мы будем полагать содержание лития-7 в природном литии равным среднему значению 92,5 %. Следовательно, плотность атомных ядер литий-7 в литиевом слое $n = 4,596 \cdot 10^{22} \times 0,925 = 4,251 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ с точностью 0,1 %.

Определим толщину литиевого слоя l . Она измерена предложенным и реализованным *in situ* методом [158]. Метод основан на сравнении выхода 478 кэВ фотонов из исследуемого литиевого слоя и из толстого, облучаемого 1,85 МэВ протонами.

Толстым слоем называем слой лития толщиной более длины пробега протона в литии до энергии порога реакции $^7\text{Li}(p,p'\gamma)^7\text{Li}$, равной 478 кэВ. При выборе толщины лития используем выражение для скорости потери энергии протона S в литии в зависимости от его энергии E [159]:

$$S = \frac{S_{\text{low}} \cdot S_{\text{high}}}{S_{\text{low}} + S_{\text{high}}} \text{ эВ}/(10^{15} \text{ ат}/\text{см}^2), \quad (4.5)$$

где $S_{\text{low}} = A_1 E^{0,45}$, $S_{\text{high}} = \frac{A_2}{E} \ln(1 + \frac{A_3}{E} + A_4 E)$, $A_1 = 1,6$, $A_2 = 725,6$, $A_3 = 3013$, $A_4 = 0,04578$, E в кэВ. Используя данное выражение для скорости потери энергии протона в литии и учитывая практически прямолинейное распространение протона в литии, найдем глубину проникновения; она составляет 145 мкм для 1,85 МэВ протона и 17 мкм для 0,478 МэВ протона. Следовательно, протоны с начальной энергией 1,85 МэВ будут генерировать 478 кэВ фотоны вплоть до глубины 128 мкм от поверхности лития.

Для изготовления толстой мишени с литиевым слоем толщиной 227 мкм использовали 640 мг лития. Литий взвешивали на весах OHAUS PX-84 (США), минимальный предел веса – 200 мг, точность – 0,1 мг. Мишень облучили протонным пучком и измерили спектр фотонов спектрометром γ -излучения СЕГ-1КП (ИФТП, Дубна) на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия (HPGe γ -спектрометр) [125]. Спектр γ -излучения, измеренный в течение 611 с (живое время 600,3 с) при токе пучка протонов $4,24 \pm 0,02$ мкА, представлен на рисунке 38а. Скорость счета линии 478 кэВ составляет 84,59 событий/с; на единицу тока – 19,95 событий/(с·мкА); всего событий в линии 50757.

Затем литиевый слой с мишени был смыт водой и на мишень напылен тонкий слой лития толщиной примерно 0,5 мкм, для этого использовали ~ 1,5 мг лития. Мишень с тонким слоем лития была установлена в то же положение и γ -спектрометром измерен спектр γ -излучения в течение 100 мин (живое время 5926,8 с) при токе пучка протонов $10,10 \pm 0,05$ мкА (рисунок 38б). Скорость счета линии 478 кэВ составляет 1,50 событий/с; на единицу тока – 0,148 событий/(с·мкА); всего событий в линии 8904.

Отношение интенсивности излучения 478 кэВ фотонов на единицу тока из исследуемого литиевого слоя и из толстого равно $A = 0,148 / 19,95 = 7,45 \cdot 10^{-3}$.

Используя формулу, приведенную в работе [159], получим толщину исследуемого литиевого слоя l (мкм) $= 45,698 \cdot A^2 + 56,281 \cdot A = 0,422$. Принимая во внимание стабильность тока протонов (1 %), статистическую ошибку набора данных (0,4 и 1,1 %) и достоверность вписывания распределения Гаусса в линию 478 кэВ (0,5 и 2,5 %), получим погрешность измерения толщины лития 3 %.

Таким образом, толщина лития равна $l = 0,422 \pm 0,013$ мкм.

Y , события, отн. ед.

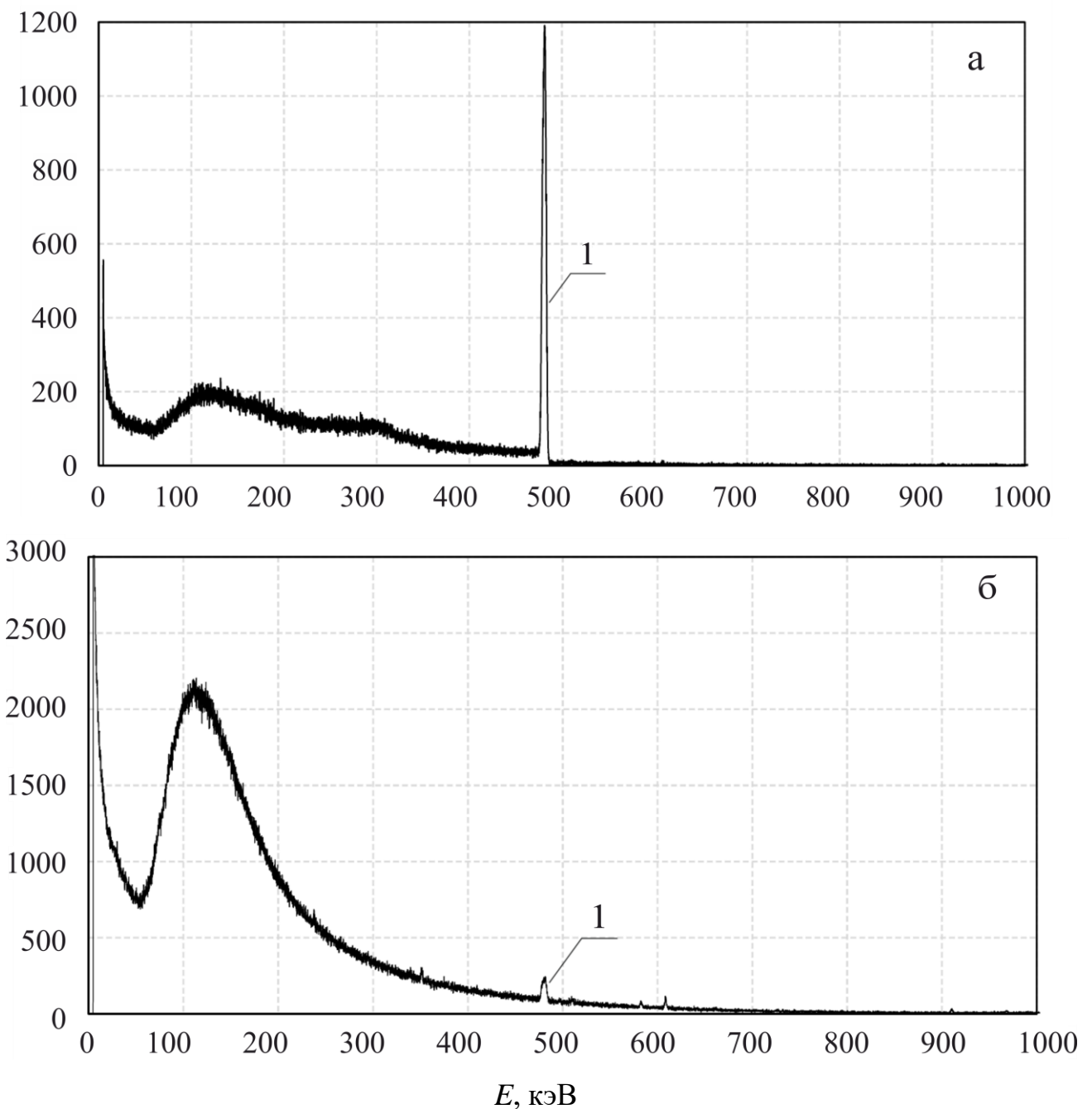


Рисунок 38 – Спектр от HPGe γ -спектрометра: *а* – толстый слой лития, *б* – тонкий слой лития

В Главе 3 обращено внимание на то, что при напылении слой лития покрывается дополнительным слоем толщиной от 10 до 40 нм, содержащим атомные ядра кислорода и углерода. В данном случае толщина этого слоя была в этом диапазоне: в нем содержалось $120 \cdot 10^{15}$ атомных ядер кислорода и $10 \cdot 10^{15}$ – углерода. Оценим потерю энергии протона при прохождении этого слоя, используя выражение 4.5, приведенное на стр. 95. Принимая коэффициенты $A_1 = 2,989$, $A_2 = 1445$, $A_3 = 957,2$, $A_4 = 0,02819$ для углерода и $A_1 = 3$, $A_2 = 1920$, $A_3 = 2000$, $A_4 = 0,0223$ для кислорода [159], получим, что протон с энергией 600 кэВ тормозится на ≈ 1 кэВ, с энергией 2 МэВ – на $\approx 0,5$ кэВ. Такой незначительной потерей энергии протона пренебрегаем.

При измерении сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ чувствительную часть детектора α -спектрометра размещают на расстоянии 516 мм от лития под углом $168 \pm 0,5^\circ$ к импульсу протонов. Характерный спектр, регистрируемый α -спектрометром, представлен на рисунке 39. Основной сигнал (1, 2 и 3 на рисунке 39а) – это протоны, обратно отраженные на атомных ядрах меди, при этом 1 – одиночные события, 2 – двойные, 3 – тройные. На этом фоне одиночных событий отчетливо выделяются небольшие пики, обусловленные рассеянием протонов на атомных ядрах лития, углерода и кислорода (Li, C и O на рисунке 39б). Спектр обратно отраженных протонов, моделируемый SIMNRA v.7.03 [134] с указанной выше толщиной слоев лития, углерода и кислорода, хорошо согласуется с измеренным. Сигнал 4 – это α -частицы, сигнал 5 – это события одновременной регистрации α -частицы и обратно отраженного протона.

Энергия α -частиц зависит от энергии протонов; определим эту зависимость. При столкновении протона с неподвижным ядром лития образуется короткоживущее ($\tau \sim 10^{-18}$ с) компаунд ядро, которое приобретает импульс и, двигаясь, распадается на две α -частицы. Из диаграммы столкновения определим кинетическую энергию зарегистрированной α -частицы $E_M(\theta)$ при угле θ в лабораторной системе координат [156]:

$$E_M(\theta) = E_p \frac{M m_p}{(M + \tilde{M})^2} \left[\cos \theta + \sqrt{\frac{\tilde{M}(M + \tilde{M})}{M m_p} \left[\frac{M_B}{M_B + m_p} + \frac{Q}{E_p} \right] - \sin^2 \theta} \right]^2, [0 \leq \theta \leq \pi], \quad (4.6)$$

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

Максимумы в измеренных распределениях α -частиц по энергии получаются при энергиях, меньших расчетных на 50–70 кэВ. Такой сдвиг может быть вызван ионизационными потерями α -частицы при прохождении слоя лития. В соответствии с формулой Бете–Блоха [160] ионизационные потери α -частицы в литии составляют ≈ 600 МэВ/(г·см²). Такое же по величине значение ионизационных потерь α -частицы в литии приведено в базе экспериментальных данных о скорости торможения частиц в веществе Международного агентства по атомной энергии [161, 162]. Таким образом, при прохождении слоя лития толщиной 0,422 мкм α -частица теряет энергию ≈ 134 кэВ. Поскольку α -частицы генерируются во всей толщине лития, в среднем они проходят в литии 0,211 мкм и их средняя потеря энергии составляет 67 кэВ, что хорошо согласуется с измеренным сдвигом по энергии. Следовательно, измеренное смещение энергии α -частицы обусловлено ее ионизационными потерями при прохождении сквозь слой лития.

Измерения проведены при 10 значениях энергии. В таблице 8 представлены данные о проведенных измерениях: энергия протонов E , флюенс протонов Φ , полное и живое время измерения α -спектрометром, измеренный выход α -частиц (интеграл под пиком) Y , коэффициент G , связывающий системы координат.

Y , события, отн. ед.

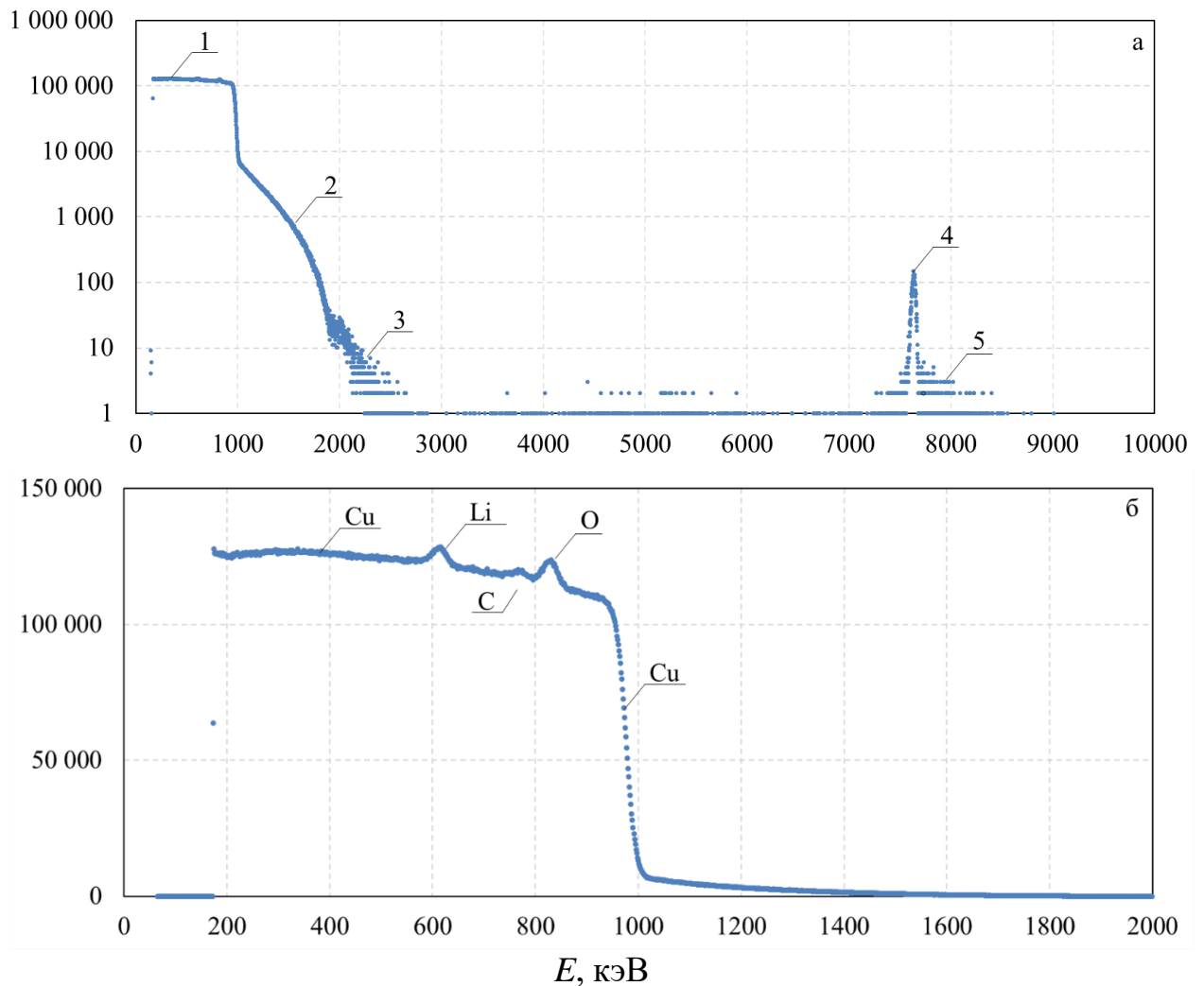


Рисунок 39 – Спектр заряженных частиц, зарегистрированных α -спектрометром при энергии протонов 1 МэВ: 1–3 – обратно отраженные протоны от атомов меди (1 – одиночные события, 2 – двойные, 3 – тройные), 4 – α -частицы, 5 – одновременная регистрация α -частицы и протона. Cu, Li, C, и O – обратно отраженные протоны от атомов меди, лития, углерода и кислорода

Чтобы определить значение Y , просуммируем все события с частицами в диапазоне энергий от 6,5 МэВ до 8 МэВ. При этом вычтем значение фона в диапазоне от 3 МэВ до 8 МэВ, равное 0,15 имп/(см²·ч), в площади 20 мм². Тогда,

предполагая равномерное распределение по каналам, получим фоновый сигнал в диапазоне энергий от 6,5 МэВ до 8 МэВ, равный 0,9 имп/ч. В 9 из 10 экспериментов измерения проведены в течение одного часа; считаем, что за это время произошло одно фоновое событие, которое вычтем. В одном эксперименте измерения проведены в течение 0,24 ч; в данном случае считаем, что в течение этого времени фоновых событий не было.

Таблица 8 – Данные параметров измерений: E – энергия протонов, Φ – флюенс протонов, полное и живое время – общее и живое время измерений α -спектрометром, Y – экспериментальный выход α -частиц (интеграл под пиком), G – коэффициент связи систем координат

E , кэВ	Φ , мКл	Полное время, с	Живое время, с	Y , события	G
601 ± 3	1,72	3756	3602	1300	1,2637
796 ± 4	3,79	3945	3613	4022	1,3115
900 ± 3	3,19	4008	3735	3838	1,3339
1000 ± 3	3,44	3908	3623	4536	1,3552
1104 ± 4	4,16	3987	3652	6186	1,3759
1300 ± 4	4,08	3916	3604	6939	1,4154
1503 ± 2	5,17	3981	3603	10197	1,4531
1703 ± 4	1,55	3746	3634	3714	1,4977
1853 ± 2	0,96	873	817	2584	1,5149
2008 ± 15	4,20	4363	4075	13363	1,5404

Полученные данные по дифференциальному сечению реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ при угле 168° представлены в таблице 9 и на рисунке 40 в сравнении с данными других авторов и баз данных ядерных реакций. Видно, что полученные нами значения дифференциального сечения реакции согласуются с большей частью данных Ciric [148] и Cavallaro [145], измеренных при угле 90° , и отличаются от остальных данных.

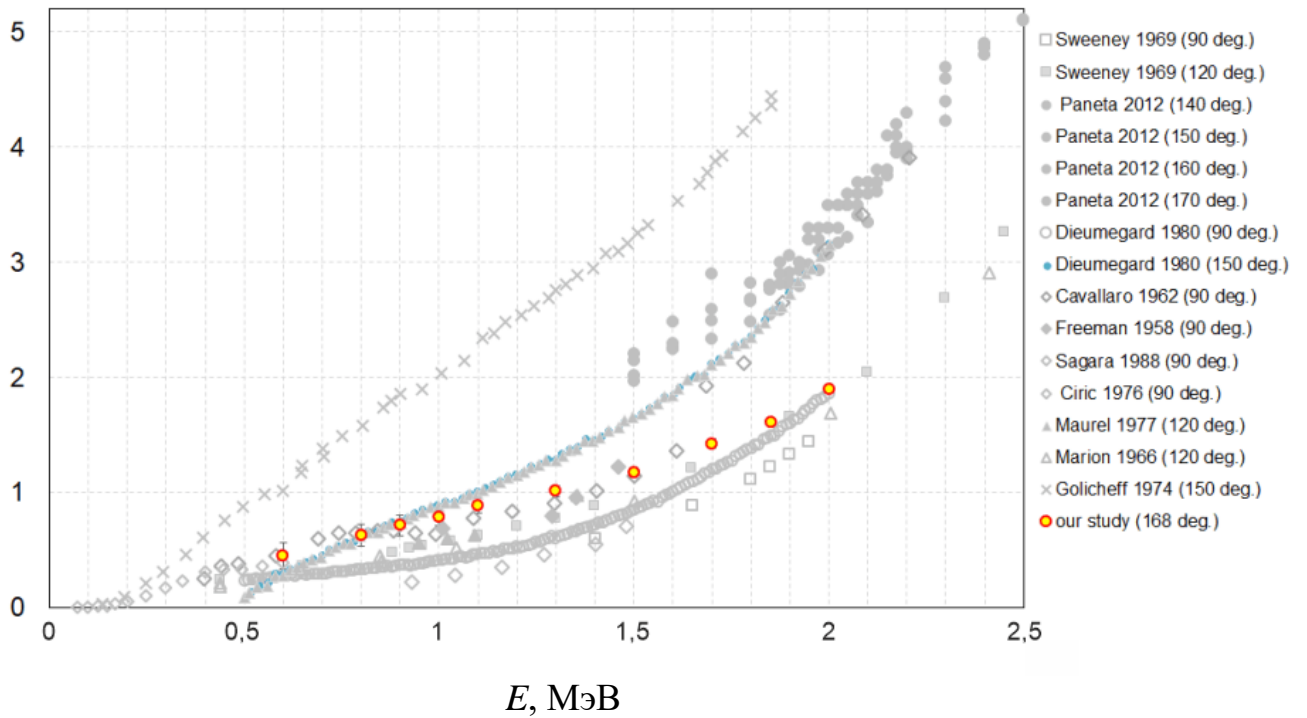
$d\sigma/d\Omega$, мбарн/ср


Рисунок 40 – Дифференциальное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

Таблица 9 – Дифференциальное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ при угле 168° :
 E – энергия протонов, ΔE – стандартное отклонение E , σ – сечение,
 $\Delta\sigma$ – статистическая дисперсия σ

E , кэВ	ΔE , кэВ	σ , мбарн/ср	$\Delta\sigma$, мбарн/ср
601	3	0,45	0,03
796	4	0,63	0,04
900	3	0,71	0,04
1000	3	0,78	0,05
1104	4	0,88	0,05
1300	4	1,01	0,06
1503	2	1,17	0,07
1703	4	1,43	0,09
1853	2	1,61	0,10
2008	15	1,89	0,11

Обсудим возможность определения полного сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$. Анализ литературных источников показывает, что здесь есть согласие относительно изотропности излучения в области энергии протонов до 2 МэВ – оно изотропно.

Автор исследования [154], проведенного на ускорителе Кокрофта–Уолтона (Лос-Аламос, США) при энергии протонного пучка до 250 кэВ и токе 25 μA с использованием мишени фторида лития и пропорционального газового детектора, указывает, что, если предположить изотропное распределение продуктов реакции в пределах ошибки 25 %, то значения сечения находятся в хорошем согласии.

В статье [145] на ускорителе Ван де Граафа Н.В.Е.С. (Катания, Италия) сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ измерено при энергии протонов от 0,4 до 2,2 МэВ кремниевым полупроводниковым детектором, установленным под углом 90° к направлению протонного пучка. Авторы обращают внимание, что угловое распределение можно расписать через полиномы Лежандра с учетом правила сохранения четности. Экспериментальные данные подтверждают отсутствие нечетных значений косинуса. Теория предполагает, что у данной реакции в диапазоне энергий до 2,2 МэВ может быть два состояния: 0^+ и 2^+ . В статье указывается, что состояние 2^+ с энергией 19,9 МэВ соответствует пику с шириной ~ 1 МэВ при энергии протонов ~ 3 МэВ. Экспериментальные данные, полученные в диапазоне энергии протонов от 0,4 до 2,2 МэВ, позволяют авторам сделать утверждение, что в спектре присутствует вклад только от одного состояния – 0^+ .

К аналогичному выводу пришли авторы статьи [153], измеряя дифференциальное сечение данной ядерной реакции на ускорителе Ван де Граафа (Тромбей, Индия) кремниевым полупроводниковым детектором под углами 10° – 170° к направлению протонного пучка с шагом в 10° . Мишень представляла собой природный литий на углеродной подложке. Измерения проведены в диапазоне энергий протонного пучка от 3,0 до 5,5 МэВ. Показано, что с повышением энергии протонов сечение ядерной реакции становится неизотропным. Авторы также

пользуются разложением дифференциального сечения на полиномы Лежандра. На рисунке 5 статьи [153] приведена зависимость коэффициентов полиномов от энергии протонов. Видно, что все коэффициенты стремятся к нулю с уменьшением энергии, поэтому ожидается, что при энергии ниже 2 МэВ сечение будет изотропным.

Современные исследования проведены на ускорителе-тандеме «Demokritos» (Афины, Греция) в 2012 г [143]. Измерения проведены с помощью кремниевого полупроводникового детектора под углами 140° , 150° , 160° и 170° , при энергиях протонного пучка от 1,5 до 7 МэВ, в качестве материала мишени использован фторид лития. Дифференциальные сечения, показанные на рисунке 4а в работе [143], позволяют однозначно предположить, что сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ изотропно в пределах ошибки при энергии ниже 3 МэВ и неизотропно при энергии выше 3 МэВ.

Для получения уверенности в том, что излучение изотропно в системе центра масс, дополнительные измерения проведены при угле 135° . Для этого мишенный узел был доработан – в него вварен патрубок под углом 135° . На медную подложку мишени напылен слой лития толщиной ~ 3 мкм, и α -спектрометром измерен энергетический спектр заряженных частиц при размещении спектрометра под углом 168° на расстоянии 712 мм и под углом 135° на расстоянии 732 мм. Измерения проведены при всех тех значениях энергии протонов, при которых было измерено дифференциальное сечение при угле 168° . Характерный спектр в области продуктов реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ представлен на рисунке 41. В данном случае энергия протонов равна 1,85 МэВ, флюенс протонов – 1,8 мКл. Измерения при угле 135° проведены в течение времени, на 10 % меньшем, чем при угле 168° , мертвое время детектора было в 1,004 раза меньше.

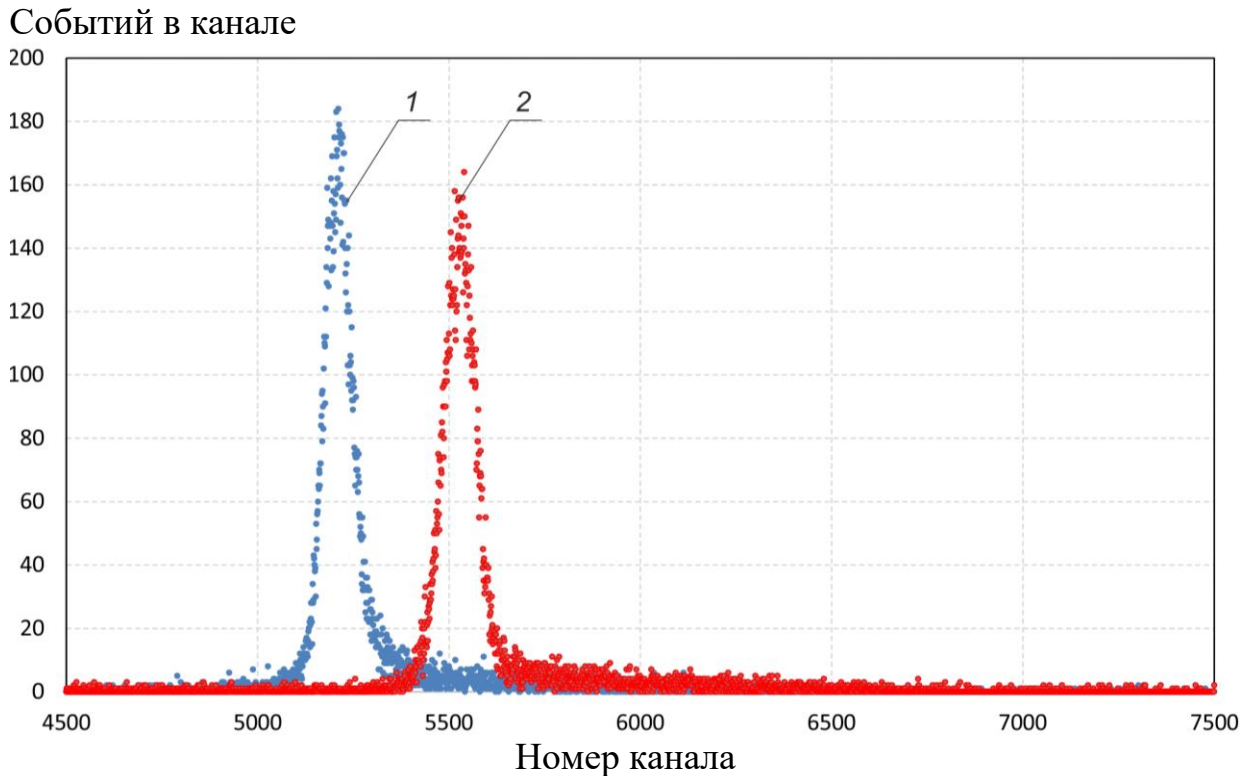


Рисунок 41 – Спектр заряженных частиц, зарегистрированных α -спектрометром при энергии протонов 1,85 МэВ: 1 – под углом 168° , 2 – под углом 135°

Представленный на рисунке 41 сигнал – это в основном α -частицы, события одновременной регистрации α -частицы и обратно отраженного протона (правее пика) и паразитные сигналы (отчетливо идентифицируются левее пика). Появление паразитного сигнала обусловлено долгим использованием α -спектрометра, приведшим к частичному повреждению детектора.

Количество событий в каналах 4900–7000 при измерении под углом 168° составляет 19144, в каналах 5200–7300 при измерении под углом 135° – 18526. Отношение этих сигналов позволяет утверждать, что регистрируемая интенсивность излучения под углом 135° составляет 97 % от интенсивности под углом 168° . Такой же результат получается, если учитывать мертвое время и/или учитывать вклад паразитного сигнала. Теперь учтем тот факт, что под углом 135° детектор размещен на большем расстоянии – 732 мм вместо 712 мм. В данном случае телесный угол регистрации частиц на 5,7 % меньше, следовательно, в лабораторной системе координат интенсивность излучения под углом 135°

составляет 103 % от интенсивности под углом 168° . При изотропном излучении в системе центра масс, как дают вычисленные значения коэффициента G , интенсивность излучения под углом 135° должна составлять 108 % от интенсивности под углом 168° . Таким образом, полагая излучение изотропным, мы получили, что измерение под углом 135° дает значение полного сечения реакции на 5 % меньше, чем определенного из результатов измерения под углом 168° . Такое различие меньше точности измерения и нет оснований полагать неизотропность излучения в системе центра масс.

Подобный результат получен и при анализе сигналов для всех других энергий протонов, а именно: полное сечение реакции, определенное из измерений под углом 135° , отличается от полного сечения реакции, определенного из измерений под углом 168° , на небольшую величину в диапазоне от на 6 % больше до на 8 % меньше; в среднем на 2 ± 5 % меньше. Этот результат позволяет утверждать, что излучение продуктов реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ в диапазоне энергий от 0,6 до 2 МэВ изотропно в системе центра масс, подтверждая данные других авторов.

Таким образом, измерение дифференциального сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ под углом 168° и знание того, что излучение продуктов реакции изотропно в системе центра масс, позволяет определить полное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$; оно представлено в таблице 10 и на рисунке 42.

Полученные нами данные по полному сечению хорошо согласуются с данными Абрамовича и данными в базе JENDL-4.0 (рисунок 41) [163]. Можно отметить, что наши данные о сечении с хорошей точностью ровно в 2 раза превышают значения, представленные в ENDF/B-VIII.0. Мы не можем объяснить столь значимые расхождения в данных различных авторов.

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

экспериментальных ядерных реакций) [164]. На рисунке 43 и рисунке 44 представлены скриншоты страниц упомянутых баз данных с нашими данными, опубликованными в специализированном научном журнале [16].

Таблица 10 – Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$: E – энергия протонов, ΔE – стандартное отклонение E , σ – сечение, $\Delta\sigma$ – статистическая дисперсия σ

E , кэВ	ΔE , кэВ	σ , мбарн	$\Delta\sigma$, мбарн
601	3	7,2	0,43
796	4	10,4	0,62
900	3	12,0	0,72
1000	3	13,4	0,80
1104	4	15,3	0,92
1300	4	18,0	1,08
1503	2	21,4	1,28
1703	4	26,8	1,61
1853	2	30,6	1,84
2008	15	36,6	2,20

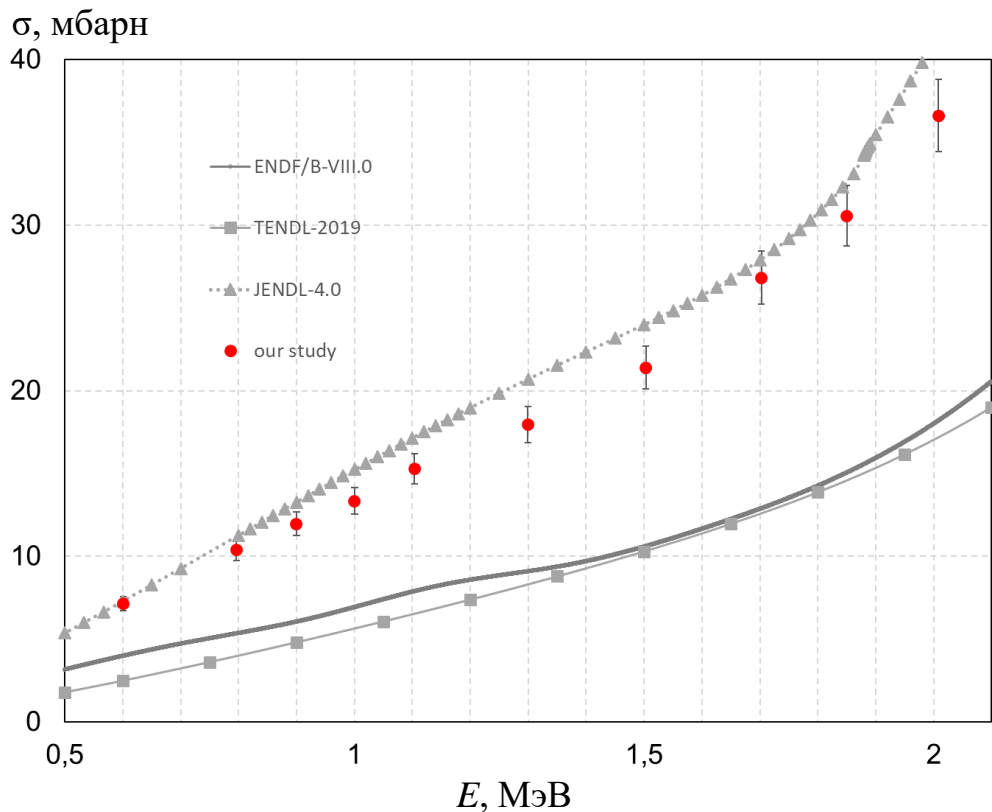


Рисунок 42 – Сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$

Reaction	Nucleus	Projectile	Angle	Energy range	Points	Reference
52	${}^7\text{Li}(p,p_1){}^7\text{Li}$	p	90°	2680-10600	31	2017-02-02 X4+ K.Kilian+(1969), Jour. Nuclear Physics, Section A, Vol.126, Issue.3, p.529 »
53	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	360°	600-2010	10	2022-09-13 - S..Taskaev+(2021), Nucl., Instrum., Methods in Physics Res., Sect.B, Vol.,525, p.,55 »
54	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	170°	1490-7000	65	2016-12-01 X4+ V.Paneta+(2012), Jour. Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B, Vol.288, p.53 »
55	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	168°	600-2010	10	2022-09-05 - S..Taskaev+(2021), Nucl., Instrum., Methods in Physics Res., Sect.B, Vol.,525, p.,55 »
56	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	160°	1490-7000	66	2016-12-01 X4+ V.Paneta+(2012), Jour. Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B, Vol.288, p.53 »
57	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	150°	500-2000	76	2012-01-20 X4+ D.Dieumegard+(1980), Jour. Nuclear Instrum. and Methods in Physics Res., Vol.168, p.93 »
58	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	150°	4040-5290	22	2012-01-20 X4+ N.Sarma+(1963), Jour. Nuclear Physics, Vol.44, Issue.2, p.205 »
59	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	150°	130-1850	46	2012-01-20 X4+ I.Goliceff+(1974), Jour. Journal of Radioanalytical Chemistry, Vol.22, p.113 »
60	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	150°	1490-7000	65	2016-12-01 X4+ V.Paneta+(2012), Jour. Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B, Vol.288, p.53 »
61	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	150°	500-2000	76	2019-02-07 + B.Maurel et al., in Ion Beam Handbook (s. 133), ed. J.W.Mayer & E.Rimini. »
62	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	140°	1490-7000	65	2016-12-01 X4+ V.Paneta+(2012), Jour. Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B, Vol.288, p.53 »
63	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	120°	440-2450	15	2022-09-11 X4+ W.E.Sweeney Jr+(1969), Jour. Physical Review, Vol.182, p.1007 »
64	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	120°	430-2410	13	2012-01-20 X4+ J.B.Marion+(1966), Jour. Nuclear Physics, Vol.77, Issue.1, p.129 »
65	${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$	p	100°	2850-5400	134	2012-01-20 X4+ N.Sarma+(1963), Jour. Nuclear Physics, Vol.44, Issue.2, p.205 »

Рисунок 43 – Скриншот страницы базы данных IBANDL; данные проведенного нами исследования представлены в строках 53 и 55

n	Display	Year	Author-1	Energy range, eV	Points	Reference	Subentry#	NSR-Ke
1	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	2022	S.Taskaev+	6.01e5 2.01e6	10	+ J,NIM/B,525,55,2022	F1465002 [1]	R33/0 2
2	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1992	Y.Tagishi+	9.00e6 2.20e7	15	+ J,NIM/A,322,304,1992	F0082002 [6]	R33/0 1
3	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1980	D.Dieumegard+	5.03e5 2.00e6	228	+ J,NIM,168,93,1980	D0134004 [1]	R33/2 1
4	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1976	D.M.Ciric+	7.28e4 5.99e5	14	+ J,BRSR,6,115,1976	F0033002 [7]	R33/1
5	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4			1.50e5 6.00e5	45		F0033003 [7]	R33/0
6	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1969	K.Kilian+	3.40e6 9.40e6	81	+ J,NP/A,126,529,1969	A1443007 [7]	R33/0 1
7	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1969	W.E.Sweeney Jr+	4.40e5 2.45e6	21	+ J,PR,182,1007,1969	A1507002 [7]	R33/2 1
8	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1962	I.B.Teplov+	3.28e6 6.56e6	40	+ J,ZET,42,(2),353,196202	A1484003 [7]	R33/0
9	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1962	S.Cavallaro+	3.97e5 2.21e6	23	+ J,NP,36,597,1962	F0025002 [6]	R33/1 1
10	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1988	A.Sagara+	9.29e5 1.48e6	6	+ J,NIM/B,34,(4),465,198810	E1863002 [3]	R33/1 1
11	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1969	G.M.Lerner+	1.36e6	1	+ J,NIM,69,(1),115,196903	A1464003 [6]	R33/3 1
12	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1963	N.Sarma+	2.85e6 5.47e6	414	+ J,NP,44,(2),205,196306	A1473002 [6]	R33/2 1
13	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4			3.00e6 5.50e6	97		A1473003 [6]	R33/0 1
14	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1962	Y.Cassagnou+	4.82e6	10	+ J,NP,33,(3),449,196205	A1475003 [6]	R33/0 1
15	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1958	J.M.Freeman+	1.01e6 1.47e6	4	+ J,NP,5,(1),148,195801	A1444002 [6]	R33/1 1
16	<input type="checkbox"/> <input checked="" type="checkbox"/> X4 <input checked="" type="checkbox"/> X4+ <input checked="" type="checkbox"/> CSV+ <input checked="" type="checkbox"/> T4	1962	Y.Cassagnou+	1.36e6 4.83e6	73	+ J,NP,33,(3),449,196205	A1475004 [6]	R33/0 1

Рисунок 44 – Скриншот страницы базы данных EXFOR; данные проведенного нами исследования представлены в первой строке

4.4 ВЫВОДЫ

В результате проведенного исследования с высокой точностью и достоверностью измерено сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ при энергии протонов от 0,6 до 2 МэВ. Высокая точность измерения достигнута реализацией нового *in situ* метода измерения толщины лития. Достоверность этого измерения подтверждается согласием с результатами измерений, проведенных еще пятью независимыми методиками: i) по измерению на весах массы лития, закладываемого для напыления, ii) по измерению проводимости воды, которой был смыт литий с медной подложки мишени, iii) по сдвигу максимума в энергетическом распределении α -частиц, iv) по уширению энергетического распределения α -частиц и v) по энергетическому распределению протонов, обратно отраженных на атомных ядрах лития.

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

Результаты измерения сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ представлены и обсуждены на LXXII Международной конференции ЯДРО-2022: Фундаментальные проблемы и применения (Москва, 2022) [16], на 29-м Международном семинаре по взаимодействию нейтронов с атомными ядрами (Дубна, 2023) [19], опубликованы в высокорейтинговом специализированном научном журнале [22] и внесены в базы данных ядерных реакций IBANDL и Exfor [164]. Измерение сечения реакции стало одним из основных результатов реализации гранта Российского научного фонда поддержки лаборатории мирового уровня [132].

Заключение

В качестве перспективной методики лечения злокачественных опухолей рассматривается бор-нейтронозахватная терапия, обеспечивающая избирательное уничтожение клеток опухоли путем накопления в них нерадиоактивных атомных ядер бор-10 и последующего облучения нейтронами. В результате поглощения нейтрона ядром бора происходит ядерная реакция с большим выделением энергии в клетке, что приводит к ее гибели. Общеизвестно, что применение ускорителя с относительно малой энергией протонов и большим током и литиевой мишени обеспечивает наилучшее качество терапевтического пучка нейтронов. В настоящее время наибольшее количество проектов клинического применения БНЗТ предусматривает использование литиевой мишени, и актуальной задачей становится исследование и подтверждение генерирующих свойств литиевой мишени для планирования и проведения терапии.

Настоящая работа посвящена измерению выхода нейтронов из литиевой мишени, исследованию содержания примесей в литиевом слое и динамики их накопления по мере облучения мишени пучком протонов, измерению сечения ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$.

Основные результаты диссертационной работы следующие:

1. Предложена и реализована методика измерения выхода нейтронов из литиевой мишени. Измерен выход нейтронов из литиевой мишени, пригодной для клинического применения, и показано согласие измеренного выхода нейтронов с расчетным, что важно для планирования терапии и оценки результатов лечения.

2. Методом спектроскопии ионного рассеяния определена концентрация примесей в литиевом слое мишени, исследована динамика их накопления при длительной генерации нейтронов, определено их влияние на выход нейтронов. Показано, что при вакуумном термическом напылении лития

на подложку мишени литиевый слой покрывается тонким слоем, содержащим атомные ядра лития, углерода и кислорода, защищающим литий от взаимодействия с сухим воздухом. Методом рентгеноэлектронной спектроскопии установлено, что на поверхности мишени образуется карбонат лития. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с проектной плотностью мощности образовавшийся слой увеличивается в толщине в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. При облучении литиевой мишени пучком протонов с критически высокой плотностью мощности слой лития становится жидким и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени. Полученные знания представляются полезными для разработки технологии поставки литиевой мишени от производителя потребителю и при определении ресурса литиевой мишени.

3. С высокой точностью и достоверностью измерено сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ при энергии протонов от 0,6 до 2 МэВ. Установлено, что измеренное сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ согласуется со значениями, приведенными в базе данных ядерных реакций JENDL-4.0, и примерно в 2 раза больше значений, приведенных в базах данных ядерных реакций ENDF/B-VIII.0 и TENDL-2019. Полученные данные о сечении реакции внесены в базы данных ядерных реакций IBANDL и Exfor.

Разработанная тонкая литиевая мишень обеспечивает длительную стабильную генерацию нейтронов без деградации выхода нейтронов. Она активно используется в ускорительном источнике нейтронов на площадке ИЯФ СО РАН для развития методики бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей, включая тестирование новых препаратов адресной доставки бора, разработку средств и методов дозиметрии, лечение крупных домашних животных со спонтанными опухолями, а также для радиационного тестирования и

модификации перспективных материалов, в том числе для Международного термоядерного реактора ИТЭР и Большого адронного коллайдера ЦЕРН, и для других приложений. Разработанная тонкая литиевая мишень входит в состав ускорительного источника нейтронов, поставленного в Центр БНЗТ г. Сямынь (Китай), на котором вторыми в мире приступили к терапии больных методикой БНЗТ. Литиевая мишень будет использоваться для генерации нейтронов в ускорительных источниках нейтронов, изготавливаемых для клиник в России и для Национального центра адронной терапии в области онкологии в Павии (Италия). В связи с внедрением БНЗТ в клиническую практику актуальными становятся дальнейшие исследования литиевой мишени для определения ресурса ее использования, для разработки технологии безопасного извлечения активированной мишени и ее утилизации, для разработки технологии сохранной поставки мишеней от производителя потребителю.

Автор работы выражает признательность:

своему научному руководителю Сергею Юрьевичу Таскаеву, человеку, являющемуся ядром команды БНЗТ, за неиссякаемый оптимизм и поддержку в любой ситуации;

своим родителям И.А. Бикчурину и Н.Ю. Бикчуриной – за постоянную поддержку и веру в то, что нет ничего невозможного. Своей сестре – Т.И. Бикчуриной за прекрасное времяпровождение и ценные советы. Своему любимому мужу за то, что он всегда на моей стороне;

коллективу лаборатории БНЗТ, в особенности И.Н. Сорокину, Д.А. Касатову, А.И. Касатовой, Е.А. Берендееву, И.М. Щудло, Г.М. Остринову, Т.В. Сычевой, С.С. Савинову, Я.А. Колесникову, Е.О. Соколовой, Т.А. Быкову, А.М. Кошкареву, Г.Д. Верховоду, А.С. Кузнецову, П.Д. Пономареву, А.В. Понедельченко, В.И. Эдель, С.П. Сивакову;

сотрудникам ИЯФ СО РАН; сотрудникам ИНХ СО РАН;

своим друзьям, а именно Ж.А. Паршенниковой, Я.Д. Семиной, В.А. Силютиной, О.Ф. Фиалко, А.А. Морсину, М.Г. Галстян, А.В. Люлину, А.А. Проскуражковой, И.М. Котовой, А.М. Котову, И.А. Сидоренко, Д.С. Сидоренко.

Список литературы

1. Neutron Capture Therapy. Principles and Applications / edited by W. A. G. Sauerwein, A. Wittig, R. Moss, Y. Nakagawa. – Heidelberg : Springer, 2012. – 553 p. – ISBN 978-3-642-31333-2. – Текст : непосредственный.
2. Таскаев, С. Ю. Бор-нейтронозахватная терапия / С. Ю. Таскаев, В. В. Каньгин. – Новосибирск : Издательство СО РАН, 2016. – 213 с. – ISBN 978-5-7692-1500-1. – Текст : непосредственный.
3. Accelerator-based BNCT for patients with recurrent glioblastoma: a multicenter phase II study / S. Kawabata, M. Suzuki, K. Hirose [et al.]. – Текст : электронный // Neuro-Oncology Advances. – 2021. – Vol. 3, nr 1. – P. 1–9. – URL: <https://doi.org/10.1093/noajnl/vdab067>. – Дата публикации: 20.05.2021.
4. 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 / K. Hirose, A. Konno, J. Hiratsuka [et al.]. – Текст : электронный // Radiotherapy and Oncology. – 2021. – Vol. 155. – P. 182–187. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.radonc.2020.11.001>. – Дата публикации: 11.11.2020.
5. International Society for Neutron Capture Therapy : [сайт]. – URL: <https://us2.campaign-archive.com/?u=24744bc99c0bf8b960f093b4b&id=771f8e959e> (дата обращения: 20.04.2023). – Яз. англ. – Текст : электронный.
6. Advances of LINAC-based boron neutron capture therapy in Korea / Y. Bae, D. Kim, H.J. Seo [et al.]. – Текст : электронный // AAPPS Bulletin. – 2022. – 32:34. – URL: <https://doi.org/10.1007/s43673-022-00063-2>. – Дата публикации: 27.10.2022.
7. International Society for Neutron Capture Therapy : [сайт]. – URL: <https://isnct.net/bnct-boron-neutron-capture-therapy/accelerator-based-bnct->

projects2021/ (дата обращения: 20.04.2023). – Яз. англ. – Текст : электронный.

8. Таскаев, С. Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов : специальность 01.04.01 «Приборы и методы экспериментальной физики» : диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук / Таскаев Сергей Юрьевич ; Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2014. – 295 с. – Текст: непосредственный.
9. Касатов, Д. А. Исследование материалов нейтроногенерирующей мишени для бор-нейтронозахватной терапии : специальность 1.13.18 «Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника» : диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук / Касатов Дмитрий Александрович ; Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2022. – 143 с. – Текст: непосредственный.
10. Соколова, Е. О. Исследование и оптимизация тонкой литиевой мишени для генерации нейтронов : специальность 1.13.18 «Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника» : диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук / Соколова Евгения Олеговна ; Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2022. – 127 с. – Текст: непосредственный. 2022, к.ф.-м.н.
11. In vivo Accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy for Spontaneous Tumors in Large Animals: Case Series / V. Kanygin, A. Kichigin, A. Zaboronok [et al.] – Текст : электронный // *Biology*. – 2022. – Vol. 11. – 138. – URL: <https://doi.org/10.3390/biology11010138>. – Дата публикации: 14.01.2022.
12. Gadolinium neutron capture therapy for cats and dogs with spontaneous tumors using Gd-DTPA / V. Kanygin, A. Zaboronok, A. Kichigin [et al.] – Текст : электронный // *Veterinary Sciences*. – 2023. – Vol. 10. – 274. – URL: <https://doi.org/10.3390/vetsci10040274>. – Дата публикации: 04.04.2023.
13. Measurement of Parameters of Neutron Radiation on the Accelerator-Based Epithermal Neutron Source / M. Bikchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. –

Текст : электронный // Proceedings of the XXVII Russian Particle Accelerator Conference (Alushta, September 26th - October 2st 2021). – Alushta, 2021. – P. 337-339. – URL: <https://doi.org/10.18429/JACoW-RuPAC2021-TUPSB53>. – Дата публикации: 01.10.2021.

14. Study of impurities accumulation in a thin lithium target by an ion scattering spectroscopy / M. Bikchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of abstracts of the Proceedings of the XXVIII Russian Particle Accelerator Conference (Novosibirsk, 11–15 September 2023). – Novosibirsk, 2023. – P. 29–30.
15. High flux neutron source for various applications / M. Bikchurina, T. Bykov, E. Vyambatseren [et al.]. – Текст : электронный // Book of abstracts of the 9 International Conference of the Union for Compact Accelerator-driven Neutron Sources (Japan, 28-31 March 2022). – Japan, 2022. – P. 33. – Дата публикации: 31.03.2022.
16. Cross-section measurement for the ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ reaction / M. Bickchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // LXXII International conference “NUCLEUS-2022: Fundamental problems and applications”. Book of Abstracts. Ed. by K. A. Stopani and N. S. Zelenskaya (Moscow, Russia, 11-16 July 2022). – Moscow, 2022. – P. 164. – Дата публикации: 16.07.2022.
17. Using RBS for in situ characterization of BNCT lithium targets / M. Bikchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Book of abstracts of the 11 Young Researchers BNCT Meeting (Virtual congress, 14-18 November 2022). – Virtual congress, 2022. – P. 35-36. – Дата публикации: 18.10.2022.
18. Study of impurity accumulation in a lithium neutron-generating target / M. Bikchurina, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Book of abstracts of the 11 Young Researchers BNCT Meeting (Virtual congress, 14-18 November 2022). – Virtual congress, 2022. – P. 31. – Дата публикации: 18.10.2022.

- 19.** Measurement of cross sections for nuclear reactions of interaction of protons and deuterons with lithium at ion energy energies 0.4 – 2.2 MeV / M. Bikchurina, T. Vykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Book of abstracts of the 29th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei (Dubna, Russia, May 29th - June 2nd, 2023). – 26 с. – Дата публикации: 1.06.2023.
- 20.** Измерение сечений ядерных реакций взаимодействия протонов и дейтронов с литием / М.И. Бикчурина, Т.А. Быков, Д.А. Касатов [и др.]. – Текст : электронный // Книга абстрактов 2-й школы молодых ученых по синхротронным методам исследования в материаловедении (Новосибирск, Россия, 25-27 октября, 2023). – Дата публикации 27.10.2023.
- 21.** Бикчурина, М. И. Измерение спектра и потока нейтронов ускорительного источника нейтронов : специальность 1.3.9 «Физика плазмы» : научно-квалификационная работа магистра / Бикчурина Марина Игоревна ; Новосибирский государственный университет. – Новосибирск, 2021. – 64 с. – Текст : непосредственный.
- 22.** Cross-section measurement for the ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ reaction at proton energies 0.6 - 2 MeV / S. Taskaev, M. Bikchurina, T. Vykov [et al.]. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2022. – Vol. 525. – P. 55-61. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2022.06.010>. – Дата публикации: 15.08.2022.
- 23.** VITA high flux neutron source for various applications / M. Bikchurina, T. Vykov, E. Vyambatseren [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Neutron Research. – 2022. – Vol. 24, nr. 3-4. – P. 273–279. – URL: DOI 10.3233/JNR-220020. – Дата публикации: 18.01.2023.
- 24.** The measurement of the neutron yield of the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction in lithium targets / M. Bikchurina, T. Vykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Biology. – 2021. – Vol. 10, nr 9. – P. 824 – URL: <https://doi.org/10.3390/biology10090824>. – Дата публикации: 24.08.2021.

25. Neutron Source Based on Vacuum Insulated Tandem Accelerator and Lithium Target / S. Taskaev, E. Berendeev, M. Bikchurina [et al.]. Текст : электронный // *Biology*. – 2021. – Vol. 10, nr 5. – P. 350. URL: <https://doi.org/10.3390/biology10050350>. – Дата публикации: 21.04.2021.
26. *Advances in Boron Neutron Capture Therapy*. – Vienna: International Atomic Energy Agency, 2023. – 416 P. – ISBN 978–92–0–132623–2. – Текст : электронный.
27. Status of the accelerator based BNCT projects worldwide / Y. Kiyanagi, Y. Sakurai, H. Kumada [et al.]. Текст : электронный // *AIP Conference Proceedings*. – 2019. – nr 21601. – P. 050012. URL: <https://doi.org/10.1063/1.5127704>. – Дата публикации: 02.10.2019.
28. Characteristics comparison between a cyclotron-based neutron source and KUR-HWNIF for boron neutron capture therapy / H. Tanaka, Y. Sakurai, M. Suzuki [et al.]. Текст : электронный // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2009. – Vol. 267, nr 11. – P. 1970–1977. URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.03.095>. – Дата публикации: 01.06.2009.
29. Kansai BNCT MEDICAL CENTER : [сайт]. – URL: <https://www.omp.ac.jp/en/kbmc.html>. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
30. Kim, S. A-BNCT Project. / S. Kim. Текст : электронный // *Dawonsys*. – 2018. – URL: <https://indico.ibs.re.kr/event/191/material/slides/52.pdf>. – Дата публикации: 30.01.2018.
31. Development of beryllium-based neutron target system with three-layer structure for accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy / H. Kumada, T. Kurihara, M. Yoshioka [et al.]. Текст : электронный // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2015. – Vol. 106. – P. 78–83. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.07.033>. – Дата публикации: 25.07.2015.
32. Beam performance of the iBNCT as a compact linac-based BNCT neutron source developed by University of Tsukuba / H. Kumada, K. Takada, F. Naito [et al.]. Текст : электронный // *AIP Conference Proceedings*. – 2019. – nr 2160. – P.

050013. URL: <https://doi.org/10.1063/1.5127705>. – Дата публикации: 02.10.2019.
- 33.** Demonstration of a high-intensity neutron source based on a liquid-lithium target for accelerator based boron neutron capture therapy / S. Halfon, A. Arenshtam, D. Kijel [et al.]. Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2015. – Vol. 106. – P. 57–62. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.07.045>. – Дата публикации: 12.2015.
- 34.** MUNES project: an intense Multidisciplinary Neutron Source for BNCT based on a high intensity RFQ accelerator / E. Pisent, E. Fagotti, P. Colautti [et al.]. Текст : электронный // Proceedings of the 16th International Congress – 2014. – P. 66. Дата публикации: 17.07.2014.
- 35.** CHINA SPALLATION NEUTRON SOURCE, China builds first accelerator-based facility for boron neutron capture therapy experiments : [сайт]. – URL: <http://english.ihep.cas.cn/csns/doc/3958.html>. (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 36.** Evaluation of radioactivity in the bodies of mice induced by neutron exposure from an epithermal neutron source of an accelerator-based boron neutron capture therapy system / S. Nakamura, S. Imamichi, K. Masumoto [et al.]. Текст : электронный // Proceedings of the Japan Academy, Series B. – 2017. – Vol. 93, nr. 10. – P. 821–831. URL: [10.2183/pjab.93.051](https://doi.org/10.2183/pjab.93.051). – Дата публикации: 12.2017.
- 37.** Characterization of the relationship between neutron production and thermal load on a target material in an accelerator-based boron neutron capture therapy system employing a solid-state Li target / S. Nakamura, H. Igaki, M. Ito [et al.]. Текст : электронный // PLOS ONE. – 2019. – Vol. 14, nr. 11. – P. e0225587. URL: <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0225587>. – Дата публикации: 22.11.2019.
- 38.** Dependence of neutrons generated by ${}^7\text{Li}(p,n)$ reaction on Li thickness under free-air condition in accelerator-based boron neutron capture therapy system employing solid-state Li target / S. Nakamura, H. Igaki, H. Okamoto [et al.]. Текст : электронный // Physica Medica. – 2019. – Vol. 58. – P. 121–130. URL: <https://doi.org/10.1016/j.ejmp.2019.02.010>. – Дата публикации: 02.2019.

- 39.** Neutron flux evaluation model provided in the acceleratorbased boron neutron capture therapy system employing a solid-state lithium target / S. Nakamura, H. Igaki, M. Ito [et al.]. Текст : электронный // Scientific Reports. – 2021. – Vol. 11. – P. 8090. URL: <https://doi.org/10.1038/s41598-021-87627-8>. – Дата публикации: 13.04.2021.
- 40.** Таскаев, С. Ю. Ускорительный источник нейтронов VITA / С. Ю. Таскаев. – Москва : ФИЗМАТЛИТ, 2024. – 248 с. + 8 с. цв. вкл. – ISBN 978-5-9221-1979-5. – Текст : непосредственный.
- 41.** Taskaev S. Accelerator-based Neutron Source for Boron Neutron Capture Therapy and other Applications / S. Taskaev. Текст : электронный // International Conference on Accelerators for Research and Sustainable Development: From Good Practices Towards Socioeconomic Impact. – 2022. URL: https://bnct.inp.nsk.su/publics/2022/S6.A_2_140_Taskaev_Slides.pdf. – Дата публикации: 2022.
- 42.** [сайт]. – URL: <https://bnct.inp.nsk.su/publics/2023/bnct-film.mp4>. (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Рус. – Текст : электронный.
- 43.** Ускорительный источник нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии / А.А. Иванов, А.Н. Смирнов, С.Ю. Таскаев [и др.]. Текст : электронный // Успехи физических наук. – 2022. – Том 192, № 7. – стр. 893-912. URL: [10.3367/UFNe.2021.02.038940](https://doi.org/10.3367/UFNe.2021.02.038940). – Дата публикации: 08.2022.
- 44.** Liu Y.-H., Shu D.-Y., Xu W.-Y. The NEUPEX System and the Xiamen Humanity Hospital BNCT Centre / Y.-H. Liu, D.-Y. Shu, W.-Y. Xu. // In book: Advances in Boron Neutron Capture Therapy. – Vienna: International Atomic Energy Agency, 2023. – P. 261–267. – ISBN 978–92–0–132623–2. – Текст : электронный.
- 45.** TAE LIFE SCIENCES, Alphabeam System : [сайт]. – URL: <https://taelifesciences.com/alphabeam-neutron-system/>. (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.

- 46.** NEUBORON, boron neutron capture therapy : [сайт]. – URL: <https://en.neuboron.com/bnct>. (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 47.** BNCT at the Italian National Center for Oncological Hadrontherapy / S. Agosrelo, S. Altieri, F. Ballrini [et al.]. // In book: Advances in Boron Neutron Capture Therapy. – Vienna: International Atomic Energy Agency, 2023. – P. 261–267. – ISBN 978–92–0–132623–2. – Текст : электронный.
- 48.** Design of beam shaping assembly for an accelerator-driven BNCT system in Nagoya University / A. Uritani, Y. Menjo, K. Watanabe [et al.]. Текст : электронный // JPS Conference Proceedings. – 2018. – Vol. 22. – P. 011002. URL: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.22.011002>. – Дата публикации: 25.08.2017.
- 49.** First experimental verification of the neutron field of Nagoya University accelerator-driven neutron source for boron neutron capture therapy / K. Watanabe, S. Yoshihashi, A. Ishikawa [et al.]. Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2021. – Vol. 168. – P. 109553. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109553>. – Дата публикации: 02.2021.
- 50.** UNIVERSITY OF BIRMINGHAM, High Flux Accelerator-Driven Neutron Facility : [сайт]. – URL: <https://www.nnuf.ac.uk/high-flux-accelerator-driven-neutronfacility>, <https://physicsworld.com/a/boron-neutron-capture-therapy-is-back-on-the-agenda/> (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 51.** NEUTRON THERAPEUTICS, INC., Neutron Therapeutics installs Europe’s first accelerator-based boron neutron capture therapy (BNCT) platform – On track for first cancer patient treatment in 2019 : [сайт]. – URL: <http://www.neutrontherapeutics.com/news/pr-041819/> (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 52.** NEUTRON THERAPEUTICS, INC., Neutron Therapeutics to install its BNCT cancer therapy system into Japan’s largest private hospital chain : [сайт]. – URL:

<http://www.neutrontherapeutics.com/news/pr-071619/> (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.

- 53.** BUSINESS WIRE, Neutron Therapeutics and University Hospital of Brussels Announce Their Collaboration to Offer Cancer Patients a Revolutionary New Treatment Method at Institut Jules Bordet : [сайт]. – URL: <https://www.businesswire.com/news/home/20220623005093/en/Neutron-Therapeutics-and-University-Hospital-of-Brussels-Announce-Their-Collaboration-to-Offer-Cancer-Patients-a-Revolutionary-New-Treatment-Method-at-Institut-Jules-Bordet> (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 54.** BNCT research activities at the Granada group and the project NeMeSis: Neutrons for Medicine and Sciences, towards an accelerator-based facility for new BNCT therapies, medical isotope production and other scientific neutron applications / I. Porras, J. Praena, F. Arias de Saaverda [et al.]. Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2020. – Vol. 163. – P. 109247. URL: [10.1016/j.apradiso.2020.109247](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109247). – Дата публикации: 06.07.2020.
- 55.** Present status of accelerator-based BNCT / A.J. Kreiner, J. Bergueiro, D. Cartelli [et al.]. Текст : электронный // Reports of Practical Oncology & Radiotherapy. – 2016. – Vol. 21, nr. 2. – P. 95–101. URL: <https://doi.org/10.1016/j.rpor.2014.11.004>. – Дата публикации: 04.2016.
- 56.** Status of low-energy accelerator-based BNCT worldwide and in Argentina / D.E. Cartlli, M. E. Capoulat, M. Baldo [et al.]. Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2020. – Vol. 166. – P. 109315. URL: [10.1016/j.apradiso.2020.109315](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109315). – Дата публикации: 12.2020.
- 57.** JANIS – Nuclear Energy Agency (NEA) : [сайт]. – URL: https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_39910/janis. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 58.** Lee, C. Thick target neutron yields for the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold / C. Lee, X. Zhou. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. –

1999. – Vol. 152. – P. 1-11. – URL: [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00026-9](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00026-9). – Дата публикации: 01.04.1999.
- 59.** PINO - neutron spectra from ${}^7\text{Li}(p,n)$ and ${}^9\text{Be}(p,n)$: [сайт]. – URL: <https://exp-astro.de/pino/> (дата обращения: 24.04.2023). – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 60.** A multichannel neutron flux monitoring system for a boron neutron capture therapy facility / Т. Выков, D. Kasatov, A. Koshkarev [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2019. – Vol. 14. – P. 12002. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/14/12/P12002>. – Дата публикации: 05.12.2019.
- 61.** Initial trials of a dose monitoring detector for boron neutron capture therapy / Т. Выков, D. Kasatov, A. Koshkarev [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2021. – Vol. 16. – P. 01024. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/01/P01024>. – Дата публикации: 22.12.2021.
- 62.** Evaluation of depth-dose profiles in a water phantom at the BNCT facility at BINP / Т. Выков, D. Kasatov, A. Koshkarev [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2021. – Vol. 16. – P. 10016. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/10/P10016>. – Дата публикации: 14.10.2021.
- 63.** Измерение спектра нейтронов ускорительного источника времяпролетным методом / В.И. Алейник, Д.А. Касатов, С.Ю. Таскаев [и др.]. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2014. – № 4. – с. 9–13. URL: <https://doi.org/10.7868/S0032816214030021>. – Дата публикации: 2014.
- 64.** Макаров, А. Н. Измерение спектра эпитепловых нейтронов ускорительного источника времяпролётным методом : специальность 01.04.01 «Приборы и методы экспериментальной физики» диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук / Макаров Александр Николаевич ; Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2015. – 109 с. – Текст: непосредственный.

- 65.** Dosimetry for Boron Neutron Capture Therapy Developed and Verified at the Accelerator based Neutron Source VITA / M. Bikchurina, T. Bykov, I. Ibrahim [et al.]. – Текст : электронный // *Frontiers in Nuclear Engineering*. – 2023. – Vol. 2. – P. 1266562. – URL: <https://doi.org/10.3389/fnuen.2023.1266562>. – Дата публикации: 03.10.2023.
- 66.** In situ study of the blistering effect of copper with a thin lithium layer on the neutron yield in the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction / T. Bykov, N. Goloshevskii, S. Gromilov [et al.]. – Текст : электронный // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. – 2020. – Vol. 481. – P. 62–81. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2020.08.010>. – Дата публикации: 15.10.2020.
- 67.** Дозиметры-радиометры ДКС-96 : [сайт]. – URL: https://www.doza.ru/docs/radiation_control/dks-96-manual.pdf. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 68.** Устройство детектирования УДМН-100 : [сайт]. – URL: http://www.doza.ru/docs/radiation_control/udmn_100.pdf. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 69.** Универсальный нейтронный спектрометр-дозиметр UNSD-15 Mobile : [сайт]. – URL: <https://www.centeradc.ru/fajlovyj-arhiv-20020/dokumentacija/universalnyj-nejtronnyj-spektrometr-dozimetr-unsd>. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 70.** Радиометры быстрых нейтронов РБН-А1 : [сайт]. – URL: <https://fgisarshin.ru/radiometry-bystryh-nejtronov-rbn-a1>. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 71.** Быков Т.А., Верховод Г.Д., Таскаев С.Ю. Измерение спектра быстрых нейтронов реакции ${}^7\text{Li}(d,n){}^8\text{Be}$ / Т.А. Быков, Г.Д. Верховод, С.Ю. Таскаев. – Текст : электронный // *Материалы XXVI Российской конференции по ускорителям заряженных частиц (Новосибирск, 2023)*, – стр. 144-146. – Дата публикации: 2023.

- 72.** Design of an epi-thermal neutron flux intensity detector with GaN wafer for boron neutron capture therapy / X.C. Guan, M. Manabe, I. Murata [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2015. – Vol. 52. – P. 503–508. – URL: 10.1080/00223131.2014.956831. – Дата публикации: 04.2015.
- 73.** Experimental study on the performance of an epithermal neutron flux detector for BNCT / X.C. Guan, M. Manabe, S. Tamaki [et al.]. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2016. – Vol. 113. – P. 28–32. – URL: 10.1016/j.apradiso.2016.04.003. – Дата публикации: 07.2016.
- 74.** The new design and validation of an epithermal neutron flux detector using $^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$ reaction for BNCT / X.C. Guan, Y. Gong, I. Murata [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2019. – Vol. 14. – P. 06016. – URL: 10.1088/1748-0221/14/06/P06016. – Дата публикации: 12.06.2019.
- 75.** Development of epi-thermal neutron beam intensity detector with $^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$ reaction for boron neutron capture therapy / Y. Kashiwagi, K. Aoki, S. Tamaki Murata [et al.]. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2019. – Vol. 151. – P. 145–149. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.05.005>. – Дата публикации: 09.2019.
- 76.** Validation and optimization of the epithermal neutron flux detector using the $^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$ reaction / E. Vyambatseren, A. Burdakov, T. Vykov [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2023. – Vol. 18. – P. 02020. – URL: 10.1088/1748-0221/18/02/P02020. – Дата публикации: 23.02.2023.
- 77.** Performance evaluation of a $^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$ reaction-based epithermal neutron flux detector at an AB-BNCT device / X. Guan, H. Wu, R. Bai [et al.]. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2024. – Vol. 207. – P. 111249. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2024.111249>. – Дата публикации: 02.2024.
- 78.** Development of liquid-lithium film jet-flow for the target of $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ reactions for BNCT / T. Kobayashi, K. Miura, N. Hayashizaki [et al.]. – Текст :

- электронный // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2014. – Vol. 88. – P. 198–202. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.12.013>. – Дата публикации: 06.2014.
- 79.** Initial experimental verification of the neutron beam modeling for the LBNL BNCT facility / D.L. Bleuel, W.T. Chu, R.J. Donahue [et al.]. – Текст : электронный // *AIP Conference Proceedings*. – 1999. – Vol. 475. – P. 1050–1055. – URL: <https://doi.org/10.1063/1.59306>. – Дата публикации: 10.06.1999.
- 80.** Measurements of the neutron yields from ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction (thick target) with incident energies from 1.885 to 2.0 MeV / W. Yu, G. Yue, X. Han [et al.]. – Текст : электронный // *Medical Physics*. – 1998. – Vol. 25, nr. 7. – P. 1222–1225. – URL: <https://doi.org/10.1118/1.598299>. – Дата публикации: 19.10.1998.
- 81.** Lithium target performance evaluation for low-energy accelerator-based in vivo measurements using gamma spectroscopy / Aslam, W.V. Prestwich, F.E. McNeill [et al.]. – Текст : электронный // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2003. – Vol. 58. – P. 321–331. – URL: [https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(02\)00346-9](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(02)00346-9). – Дата публикации: 03.2003.
- 82.** Kononov V.N. Accelerator-based intense and directed neutron source for BNCT / V.N. Kononov, V.I. Regushevsky, N.A. Soloviev. – Текст : электронный // IPPE-2577. – 1996.
- 83.** К.Н. Мухин. Экспериментальная ядерная физика. Учебник для вузов. В 2 кн. Кн. 1. Физика атомного ядра. Ч. 2. Ядерные взаимодействия. Под редакцией И. И. Гуревича, П. А. Крупчицкого / Мухин К.Н. – Москва, Энергоатомиздат, 1993. – 320 с. – ISBN 5-283-04081-X. – Текст : электронный.
- 84.** Recent refurbishment of the Oak Ridge Electron Linear Accelerator neutron source / K.H. Guber, T.S. Bigelow, C. Ausmus [et al.]. – Текст : электронный // *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*. – 2007. – nr. 117. – P. 441. – URL: [10.1051/ndata:07365](https://doi.org/10.1051/ndata:07365). – Дата публикации: 17.06.2007.
- 85.** Bramblett R. L. A new type of neutron spectrometer / R. L. Bramblett, R. I. Ewing, T. W. Bonner. – Текст : электронный // *Nuclear Instruments and*

- Methods in Physics Research. – 1960. – Vol. 9. – P. 1-12. – URL: [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(60\)90043-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(60)90043-4). – Дата публикации: 10.1960.
- 86.** Esposito A. Measurement and unfolding of neutron spectra using Bonner spheres / A. Esposito, M. Nandy. – Текст : электронный // Radiation Protection Dosimetry. – 2004. – Vol. 110, Is. 1-4. – P. 555–558. – URL: <https://doi.org/10.1093/rpd/nch385>. – Дата публикации: 01.08.2004.
- 87.** Characterization of the IRSN neutron multisphere spectrometer (HERMEIS) at European standard calibration fields / A. Cheminet, V. Lacoste, V. Gressier [et al.]. – Текст : электронный // JINST. –2012. – Vol. 7. – P. C04007. – URL: [10.1088/1748-0221/7/04/C04007](https://doi.org/10.1088/1748-0221/7/04/C04007). – Дата публикации: 11.04.2012.
- 88.** Валидация и верификация работы нового мультисферного спектрометра / М. Пышкина, А. Васильев, А. Екидин [и др.]. – Текст : электронный // II Международная научно-техническая конференция, (Минск, Беларусь, 27–28 апреля 2021). – стр. 140–145. – URL: https://libeldoc.bsuir.by/bitstream/123456789/45589/1/Pyshkina_Validatsiya.pdf. – Дата публикации: 28.04.2021.
- 89.** Experimental test of a newly developed single-moderator, multi-detector, directional neutron spectrometer in reference monochromatic fields from 144 keV to 16.5 MeV / R. Bedogni, J.M.Gómez-Ros, A. Pola [et al.]. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2015. – Vol. 782. – P. 35–39. – URL: [10.1016/j.nima.2015.02.008](https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.02.008). – Дата публикации: 11.05.2015.
- 90.** An international dosimetry exchange for boron neutron capture therapy, part 1: absorbed dose measurements / P. Binns, K. Riley, O. Harling [et al.]. – Текст : электронный // Medical Physics. – 2005. – Vol. 32. – P. 3729-3736. – URL: [10.1118/1.2132572](https://doi.org/10.1118/1.2132572). – Дата публикации: 18.11.2005.
- 91.** Binns P. Epithermal neutron beams for clinical studies of boron neutron capture therapy: a dosimetric comparison of seven beams / P. Binns, K. Riley, O. Harling. – Текст : электронный // – Radiation Research. – 2005. – Vol. 164, nr. 2. – P. 212–220. – URL: [10.1667/rr3404](https://doi.org/10.1667/rr3404). – Дата публикации: 02.08.2005.

- 92.** Järvinen H. Recommendations for the dosimetry of boron neutron capture therapy / H. Järvinen, W. P. Voorbraak – Текст : электронный // – Report 21425/03 55339/C, NRG Petten. – 2003.
- 93.** Neutron spectroscopy from 1 to 15 MeV with Mimac-FastN, a mobile and directional fast neutron spectrometer and an active phantom for BNCT and PFBT / D. Santos, N. Sauzet, O. Guillaudin – Текст : электронный // EPJ Web of Conferences. – 2020. – Vol. 231. – P. 05003. – URL: <https://doi.org/10.1051/epjconf/202023105003>. – Дата публикации: 11.03.2020.
- 94.** Углов, В. В. Методы анализа элементного состава поверхностных слоев / В. В. Углов, Н. Н. Черенда, В. М. Анищик. – Минск : Белорусская наука, 2007. – 179 с. – ISBN 978-985-485-813-5. – Текст : электронный.
- 95.** Method of surface analysis / edited by A. W. Czanderna, G. K. Wehner, D. Lichtman, T. M. Buck [et al.]. – Amsterdam, New York : Elsevier Scientific Pub. Co., 1975. – 582 p. – ISBN 9780444596451. – Текст : электронный.
- 96.** Practical surface analysis by auger and x-ray photoelectron spectroscopy / edited by D. Briggs, M. P. Seach, J. K. Riviere [et al.]. – Chichester, New York, Brisbane, Toronto, Singapore : Wiley, 1983. – 533 p. – ISBN 9780471953401. – Текст : электронный.
- 97.** Surface and thin film analysis: principles, instrumentation, application / edited by H. Bupert, H. Jenett, A. H. Bennet [et al.]. – Weinheim : Wiley-VCH, 2002. – 336 p. – ISBN 3527304584. – Текст : электронный.
- 98.** Siegbahn, K. Electron spectroscopy - an outlook / K. Siegbahn. – Текст : электронный // Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena. – 1974. – Vol. 5, nr 1. – P. 3-97.
- 99.** Петров, Н. Н. Диагностика поверхности с помощью ионных пучков / Н. Н. Петров, И. Л. Аброян. – Ленинград : ЛГУ, 1977. – 130 с. – Текст : электронный.
- 100.** Electron and Ion Spectroscopy of Solids / edited by L. Fiermans, J. Vannick, W. Dekaser [et al.]. – Berlin : Springer, 1978. – 486 p. – ISBN 1468428195. – Текст : электронный.

- 101.** Chu, W. K. Backscattering spectrometry / W. K. Chu, J. W. Mayer, M. A. Nicolet. – New York : Journal of Vacuum Science and Technology, 1978. – 384 p. – ISBN 9780323152051. – Текст : электронный.
- 102.** Шипатов, Э. Т. Обратное рассеяние быстрых ионов: теория, эксперимент, практика / Э. Т. Шипатов. – Ростов-на-Дону : Ростовский университет, 1988. – 160 с. – ISBN 5750700046. – Текст : электронный.
- 103.** Методы анализа на пучках заряженных частиц / А. А. Ключников, Н. Н. Пучеров, Т. Д. Чеснокова [и др.]. – Киев : Наукова думка, 1987. – 152 с. – ISBN 978-5-397-07449-0. – Текст : электронный.
- 104.** Boron-neutron capture therapy in Russia: preclinical evaluation of efficacy and perspectives of its application in neurooncology / A. Zaboronok, V. Byvaltsev, V. Kanygin [et al.]. – Текст : электронный // The New Armenian Medical Journal. – 2017. – Vol. 11, nr 1. – P. 1-9. – URL: <https://doi.org/10.3389/fonc.2021.601820>. – Дата публикации: 20.01.2017.
- 105.** Radiobiological response of U251MG, CHO-K1 and V79 cell lines to accelerator-based boron neutron capture therapy / E. Sato, A. Zaboronok, T. Yamamoto [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Radiation Research. – 2018. – Vol. 59, nr 2. – P. 101-107. – URL: <https://doi.org/10.1093/jrr/rrx071>. – Дата публикации: 21.12.2017.
- 106.** 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 / E. Zavjalov, A. Zaboronok, V. Kanygin [et al.]. – Текст : электронный // International Journal of Radiation Biology. – 2020. – Vol. 96, nr 7. – P. 868-878. – URL: <https://doi.org/10.1080/09553002.2020.1761039>. – Дата публикации – 12.04.2020.
- 107.** Method of measuring high-LET particles dose / M. Dymova, M. Dmitrieva, E. Kuligina [et al.]. – Текст : электронный // Radiation Research. – 2021. – Vol. 196 – P. 192-196. – URL: <https://doi.org/10.1667/RADE-21-00015.1>. – Дата публикации – 01.04.2021.

- 108.** Gold Nanoparticles Permit In Situ Absorbed Dose Evaluation in Boron Neutron Capture Therapy for Malignant Tumors / A. Zaboronok, S. Taskaev, O. Volkova [et al.]. – Текст : электронный // *Pharmaceutics*. – 2021. – V. 13 – 1490. – URL: <https://doi.org/10.3390/pharmaceutics13091490>. – Дата публикации – 16.10.2021.
- 109.** Получение наночастиц элементного бора методом ультразвуковой обработки в водной среде и их применение в бор-нейтронозахватной терапии / С.А. Успенский, П.А. Хаптаханова, А.А. Заборонок [и др.]. – Текст : электронный // Доклады Российской академии наук. Химия, науки о материалах. – 2020. – Том. 491 – С. 1-5. – URL: <https://doi.org/10.31857/S2686953520020119>. – Дата публикации – 05.04.2020.
- 110.** Tumor Cell-Specific 2'-Fluoro RNA Aptamer Conjugated with Closo-Dodecaborate as a Potential Agent for Boron Neutron Capture Therapy / M. Vorobyeva, M. Dymova, D. Novopashina [et al.]. – Текст : электронный // *International Journal of Molecular Sciences*. – 2021. – Vol. 22 – P. 7326. – URL: <https://doi.org/10.3390/ijms22147326>. – Дата публикации – 07.07.2021.
- 111.** Homocystamide conjugates of human serum albumin as a platform to prepare bimodal multidrug delivery systems for boron-neutron capture therapy / Т. Ророва, М. Думова, L. Koroleva [et al.]. – Текст : электронный // *Molecules*. – 2021. – Vol. 26 – P. 6537. – URL: <https://doi.org/10.3390/molecules26216537>. – Дата публикации – 29.10.2021.
- 112.** Dose-dependent suppression of human glioblastoma xenograft growth by accelerator-based boron neutron capture therapy with simultaneous use of two boron-containing compounds / V. Kanygin, I. Razumov, A. Zaboronok [et al.]. – Текст : электронный // *Biology*. – 2021. – Vol. 10 – P. 1124. – URL: <https://doi.org/10.3390/biology10111124>. – Дата публикации – 02.10.2021.
- 113.** Polymer-Stabilized Elemental Boron Nanoparticles for Boron Neutron Capture Therapy: Initial Irradiation Experiments / A. Zaboronok, P. Khaptakhanova, S. Uspenskii [et al.]. – Текст : электронный // *Pharmaceutics*. – 2022. – Vol. 14 –

- P. 761. – URL: <https://doi.org/10.3390/pharmaceutics14040761>. – Дата публикации – 31.03.2022.
- 114.** Laser ablation of Fe₂B target enriched in ¹⁰B content for boron neutron capture therapy / K. Aiyuzhy, E. Barmina, I. Zvestovskaya [et al.]. – Текст : электронный // Laser Physics Letters. – 2022. – Vol. 19 – P. 066002. – URL: <https://doi.org/10.1088/1612-202X/ac642c>. – Дата публикации – 20.04.2022.
- 115.** Optamers for addressed boron delivery in BNCT: Effect of boron cluster attachment site on functional activity / D. Novopashina, M Dymova, A. Davydova [et al.]. – Текст : электронный // International Journal of Molecular Sciences. – 2023. – Vol. 24 – P. 306. – URL: <https://doi.org/10.3390/ijms24010306>. – Дата публикации – 24.12.2022.
- 116.** Design of the new closo-dodecarborate-containing gemcitabine analogue for the albumin-based theranostics composition / V. Raskolupova, M. Wang, M. Dymova [et al.]. – Текст : электронный // Molecules. – 2023. – Vol. 28 – P. 2672. – URL: <https://doi.org/10.3390/molecules28062672>. – Дата публикации – 15.03.2023.
- 117.** Study of Lithium Biodistribution and Nephrotoxicity in Skin Melanoma Mice Model: The First Step towards Implementing of Lithium Neutron Capture Therapy / I. Taskaeva, A. Kasatova, D. Surodin [et al.]. – Текст : электронный // Life. – 2023. – Vol. 13 – P. 518. – URL: <https://doi.org/10.3390/life13020518>. – Дата публикации – 14.02.2023.
- 118.** In Situ Observations of Blistering of a Metal Irradiated with 2-MeV Protons / A. Badrutdinov, T. Vykov, S. Gromilov [et al.]. – Текст : электронный // Metals. – 2017. – Vol. 7, iss. 12. – P. 558. – URL: <https://doi.org/10.3390/met7120558>. – Дата публикации – 12.12.2017.
- 119.** Measurement of the ⁷Li(p,p' γ)⁷Li reaction cross-section and 478 keV photon yield from a thick lithium target at proton energies from 0.65 MeV to 2.225 MeV / S. Taskaev, T. Vykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with

- Materials and Atoms. – 2021. Vol. 502. – P. 85-94. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2021.06.010>. – Дата публикации: 01.09.2021.
- 120.** Qualification of Boron Carbide Ceramics for Use in ITER Ports / A. Shoshin, A. Burdakov, M. Ivantsivskiy [et al.]. – Текст : электронный // IEEE Transactions on Plasma Science. – 2020. – Vol. 46, nr 6. – P. 1474-1478. – URL: <https://doi.org/10.1109/TPS.2019.2937605>. – Дата публикации: 09.09.2019.
- 121.** Test results of boron carbide ceramics for ITER port protection / A. Shoshin, A. Burdakov, M. Ivantsivskiy [et al.]. – Текст : электронный // Fusion Engineering and Design. – 2021. – Vol. 168 – P. 112426. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2021.112426>. – Дата публикации: 08.03.2021.
- 122.** Integration of ITER diagnostic ports at the Budker institute / A. Shoshin, A. Burdakov, M. Ivantsivskiy [et al.]. – Текст : электронный // Fusion Engineering and Design. – 2022. – Vol. 178. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2022.113114>. – Дата публикации: 20.03.2022.
- 123.** Источник быстрых нейтронов на основе ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией и литиевой мишени / Д.А. Касатов, А.М. Кошкарёв, А.Н. Макаров [и др.]. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2020. – Том 5 – С. 5-9. – URL: <https://doi.org/10.31857/S0032816220050158>. – Дата публикации: 27.03.2020.
- 124.** Liskien H. Neutron production cross sections and energies for the reactions ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ and ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}^*$ / H. Liskien, A. Paulsen. – Текст : электронный // Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 1975. – Vol. 15, nr. 1. – P. 57-84. – URL: [https://doi.org/10.1016/0092-640X\(75\)90004-2](https://doi.org/10.1016/0092-640X(75)90004-2). – Дата публикации: январь 1975.
- 125.** Спектрометры энергии гамма-излучения полупроводниковые СЕГ-1КП : [сайт]. – URL: <https://all-pribors.ru/opisanie/66003-16-seg-1kp-75349>. – Яз. Рус. – Текст : электронный.

- 126.** New approach for calibration the efficiency of HpGe detectors / A. Alnour, H. Wagiran, N. Ibrahim [et al.]. – Текст : электронный // AIP Conference Proceedings. – 2014. – Vol. 1584. – P. 38. – URL: <https://doi.org/10.1063/1.4866101>. – Дата публикации: 17.02.2015.
- 127.** Evaluated Nuclear Data File : научная электронная библиотека : сайт. – Соединенные Штаты Америки, 2023. – URL: <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm#1> (дата обращения 23.01.2023). – Режим доступа: открытый. – Текст : электронный.
- 128.** In situ study of the blistering effect of copper with a thin lithium layer on the neutron yield in the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction / S. Taskaev, T. Bykov, N. Goloshevskii [et al.]. Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2020. – Vol. 481. – P. 62–81. URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2020.08.010>. – Дата публикации: 15.10.2020.
- 129.** Исследование влияния пространственного заряда на транспортировку 2 МэВ пучка протонов в ускорительном источнике эпитепловых нейтронов / Т.А. Быков, Д.А. Касатов, Я.А. Колесников [и др.]. – Текст : электронный // Журнал технической физики. – 2021. – Том 91, вып. 1. – С. 105-109. – URL: DOI: 10.21883/JTF.2021.01.50280.86-20. – Дата публикации: 08.07.2020.
- 130.** Handbook of Stable Isotope Analytical Techniques. – 2009. – Vol. II. – P. 1123-1321. – URL: <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-51115-7.00028-0>. – Дата публикации: 22.10.2009.
- 131.** Lieberman K. Stable isotopes of lithium: dissimilar biochemical and behavioral effects / K. Lieberman, G.J. Alexander, J.A. Sechzer. – Текст : электронный // Experientia. – 1986 – Vol. 42. – P. 985-987. – URL: <https://doi.org/10.1007/BF01940701>. – Дата публикации: сентябрь 1986.
- 132.** Карточка проекта, поддержанного Российским научным фондом : сайт. – URL: <https://rscf.ru/project/19-72-30005/>. – Текст : электронный.

- 133.** Surface Science – An Introduction / K. Oura, V. Lifshits, A. Saranin [et al.]. – New York : Springer-Verlag, 2003. – 440 p. – ISBN 3-540-00545-5. – Текст : электронный.
- 134.** SIMNRA v. 7.03 with SigmaCalc 2.0 for single user. License No. 1801-4848-WT-WA. – Дата обращения: 22.09.2021.
- 135.** Кремниевые детекторы альфа-излучения ПДПА-1К : [сайт]. – URL: <https://iftp.ru/cat/kremnievye-detektory-alfa-izlucheniya-pdpa-1k/>. – Яз. Рус. – Текст : электронный.
- 136.** Измерение фазового портрета пучка ионов в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией / М. И. Бикчурина, Т. А. Быков, Я. А. Колесников [и др.]. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2022. – №. 4. – С. 18–29. – URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=48867746>. – Дата обращения: 12.04.2023.
- 137.** Kevin N. Wood. XPS on Li Battery Related Compounds: Analysis of Inorganic SEI Phases and a Methodology for Charge Correction / Wood Kevin N., Glenn Teeter. – Текст : электронный // ACS Applied Energy Materials. – 2018. – Vol. 1, nr. 9. – P. 1–39. – URL: [10.1021/acsaem.8b00406](https://doi.org/10.1021/acsaem.8b00406).
- 138.** Колесников, Я. А. Исследование и оптимизация транспортировки и ускорения пучка ионов в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией : специальность 1.13.18 «Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника» : диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук / Колесников Ярослав Александрович ; Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2022. – 149 с. – Текст: непосредственный.
- 139.** Таблицы физических величин : справочник / под ред. И. К. Кикоина. – 1-е издание. – Москва : Атомиздат, 1976. – 1008 с. – Текст : непосредственный.
- 140.** С. Ю. Таскаев Разработка ускорительного источника эпитепловых нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии / С. Ю. Таскаев. – Текст : непосредственный // Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 2019.

– Том 50. – С. 657–669. – URL: eLIBRARY ID: 41152434. – Дата обращения: 28.04.2023.

- 141.** Current Status of Neutron Capture Therapy (IAEA-TECDOC-1223 report) / Vienna, Austria : International Atomic Energy Agency, 2001. – 292 P. – ISSN 1011–4289. – Текст : непосредственный.
- 142.** Sweeney, W. E. Gamma-ray transitions involving isobaric-spin mixed states in Be^8 / W. E. Sweeney, Jr. B. Marion, J. B. Marion. – Текст : электронный // Physical Review. – 1969. – Vol. 182. – P. 1007–1021. – URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.182.1007>. – Дата публикации: 20.06.1969.
- 143.** Differential cross-section measurements for the ${}^7\text{Li}(p,p_0){}^7\text{Li}$, ${}^7\text{Li}(p,p_1){}^7\text{Li}$, ${}^7\text{Li}(p,\alpha_0){}^4\text{He}$, ${}^{19}\text{F}(p,p_0){}^{19}\text{F}$, ${}^{19}\text{F}(p,\alpha_0){}^{16}\text{O}$ and ${}^{19}\text{F}(p,\alpha_{1,2}){}^{16}\text{O}$ reactions / V. Paneta, A. Kafkarkou, M. Kokkoris, A. Lagoyannis. – Текст : электронный // HNPS Advances in Nuclear Physics. – 2012. – Vol. 288. – P. 53–59. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2012.07.020>. – Дата публикации: 01.10.2012.
- 144.** Dieumegard, D. Microanalysis of Flourine by nuclear reactions / D. Dieumegard, B. Maurel, G. Amsel. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 1980. – Vol. 168, nr. 1-3. – P. 93–103. – URL: [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(80\)91237-9](https://doi.org/10.1016/0029-554X(80)91237-9). – Дата публикации: 15.01.1980.
- 145.** Cavallaro, S. Li^7+p interaction and excited states of Be^8 / S. Cavallaro, R. Potenza, A. Rubbino. – Текст : электронный // Nuclear Physics. – 1962. – Vol. 36. – P. 597–614. – URL: <https://doi.org/10.1016/0029-5582%2862%2990486-8>. – Дата публикации: 13.04.1962.
- 146.** Freeman, J. M. The nuclear reaction $\text{He}^4(\alpha,p)\text{Li}^7$ and its inverse: II. The reaction $\text{Li}^7(p,\alpha)\text{He}^4$ / J. M. Freeman, R. C. Hanna, J. H. Montague. – Текст : электронный // Nuclear Physics. – 1958. – Vol. 5. – P. 148–149. – URL: [https://doi.org/10.1016/0029-5582\(58\)90013-0](https://doi.org/10.1016/0029-5582(58)90013-0). – Дата публикации: 12.07.1957.
- 147.** Sagara, A. Depth profiling of lithium by use of the nuclear reaction ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$ / A. Sagara, K. Kamada, S. Yamaguchi. – Текст : электронный. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with

- Materials and Atoms. – 1988. – Vol. 34, nr. 4. – P. 465–469. – URL: [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(88\)90151-6](https://doi.org/10.1016/0168-583X(88)90151-6). – Дата публикации: 07.12.1988.
- 148.** The interaction of ${}^7\text{Li}$ isotope with low energy proton and triton beams / D. Ciric, R. Popic, R. Zakula [et al.]. – Текст : электронный // International Journal of Scientific Research. – 1976. – Vol. 6. – P. 115. – Дата обращения: 12.03.2024.
- 149.** Selected Low Energy Nuclear Reaction Data / edited by J. Mayer, E. Rimini B. Maurel [et al.]. – Текст : электронный // Ion Beam Handbook for Material Analysis. – 1977. – P. 133. – URL: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-480860-7.50011-3>. – Дата обращения: 19.04.2023.
- 150.** Marion, J. The ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}^*$ reaction and single-particle levels in ${}^8\text{Be}$ / J. Marion, M. Wilson. – Текст : электронный // Nuclear Physics. – 1966. – Vol. 77. – P. 129–148. – URL: [https://doi.org/10.1016/0029-5582\(66\)90681-X](https://doi.org/10.1016/0029-5582(66)90681-X). – Дата публикации: 03.1966.
- 151.** Golicheff I. Determination des fonctions d'excitation des reactions ${}^{19}\text{F}(p, \alpha_0){}^{16}\text{O}$ et ${}^7\text{Li}(p, \alpha_0){}^4\text{He}$ entre 150 et 1800 keV: Application a la mesure des concentrations superficielles de lithium et de fluor / I. Golicheff, M. Loeuillet, Ch. Engelmann. – Текст : электронный // Journal of Radioanalytical Chemistry. – 1974. – Vol. 22, nr. 1–2. – P. 113–129. – URL: <https://doi.org/10.1007/bf02518097>. – Дата публикации: 01.03.1974.
- 152.** Phillips, J. A. Survey of several of the reactions occurring when lithium and beryllium are bombarded by protons and deuterons fo 30-250 keV / Phillips, J. A. – Текст : электронный // U.S. Atomic Energy Commission. – 1953. – P. 1–15. – URL: OSTI Identifier 4379482. – Дата публикации: 17.09.1953.
- 153.** Sarma N. Mechanism of the $\text{Li}^7(p,\alpha)\text{He}^4$ reaction / N. Sarma, K.S. Jayaraman, C.K. Kumar. – Текст : электронный // Nuclear Physics. – 1963. – Vol. 44. – P. 205–211. – URL: [https://doi.org/10.1016/0029-5582\(63\)90020-8](https://doi.org/10.1016/0029-5582(63)90020-8). – Дата публикации: 07.1963.
- 154.** Phillips J. Survey of several of the reactions occurring when lithium and beryllium are bombarded by protons and deuterons of 30–250 keV / J. Phillips, G.

- Sawyer. – Текст : электронный // Los Alamos scientific laboratory of the University of California. – 1953. – Дата обращения: 19.04.2023.
- 155.** Макаров, А. Н. Люминесценция литиевой мишени при облучении протонным пучком / А. Н. Макаров, Е. О. Соколова, С. Ю. Таскаев. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2021. – №. 1. – С. 30–33. – URL: <https://doi.org/10.31857/S0032816220060233>. – Дата обращения: 19.04.2023.
- 156.** Широков, Ю. М. Ядерная физика, том 1 и 2 / Ю. М. Широков, Н. П. Юдин. – Москва : Наука, 1982. – 728 с. – Текст : электронный.
- 157.** Баянов, Б. Ф. Измерение толщины литиевого слоя / Б. Ф. Баянов, Е. В. Журов, С. Ю. Таскаев. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2008. – №. 1. – С. 160–162. – URL: <https://doi.org/10.1007/s10786-008-1020-x>. – Дата обращения: 22.04.2023.
- 158.** Method for in situ measuring the thickness of a lithium layer / D. Kasatov, Ia. Kolesnikov, A. Koshkarev [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2020. – Vol. 15. – P10006. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/15/10/P10006>. – Дата публикации: 12.10.2020.
- 159.** Andersen, H. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements Volume 3 of the stopping and ranges of ions in matter / H. Andersen, J. Ziegler. – New York : Pergamon Press, 1977. – 321 p. – ISBN 0-08-021605-6. – Текст : электронный.
- 160.** Мухин, К. Н. Экспериментальная ядерная физика / К. Н. Мухин. – Москва : Энергоатомиздат, 1993. – 432 с. – ISBN 978-5-8114-0741-5. – Текст : электронный.
- 161.** IAEA Stopping Power Database, version 2023-11 : [сайт]. – URL: <https://nds.iaea.org/stopping>. – Яз. Англ. – Текст : электронный.
- 162.** Montanari, C. The IAEA stopping power database, following the trends in stopping power of ions in matter / C. Montanari, P. Dimitriou. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2017. – Vol. 408. – P. 50–55. –

URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2017.03.138>. – Дата публикации: 04.2017.

163. JENDL – Japanese Evaluated Nuclear Data Library : [сайт]. – URL: <https://wwwndc.jaea.go.jp/jendl/jendl.html>. – Яз. Англ. – Текст : электронный.

164. IBANDL – Ion Beam Analysis Nuclear Data Library : [сайт]. – URL: <https://www-nds.iaea.org/exfor/ibandl.htm>. – Яз. Англ. – Текст : электронный.