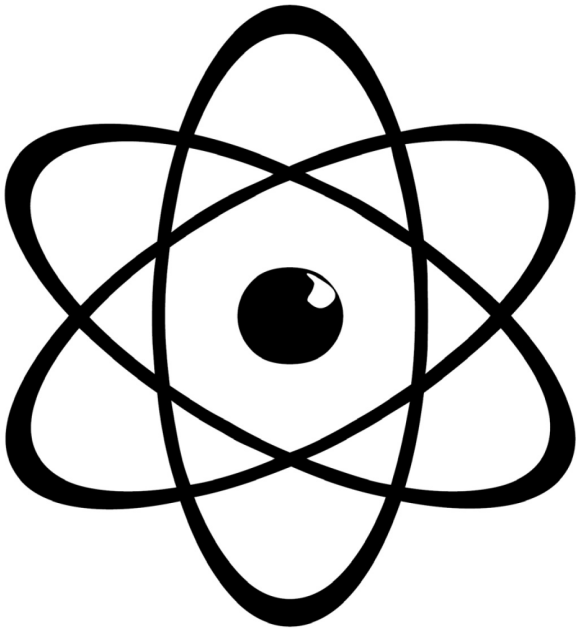
МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ, МОЛОДІ ТА СПОРТУ УКРАЇНИ

# ВІСНИК

## ХАРКІВСЬКОГО НАЦІОНАЛЬНОГО УНІВЕРСИТЕТУ

імені В.Н. Каразіна

№ 1025



2012

ISSN 2221-7754

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ, МОЛОДІ ТА СПОРТУ УКРАЇНИ

# ВІСНИК

## ХАРКІВСЬКОГО НАЦІОНАЛЬНОГО УНІВЕРСИТЕТУ

імені В.Н. Каразіна

## № 1025

*серія: фізична*

## «Ядра, частинки, поля»

Заснована у 1998 р.

Випуск **4** /56/

# The Journal of Kharkiv National University

## № 1025

*physical series*

## «Nuclei, Particles, Fields»

Issue **4** /56/

Харків

**2012**

**DESCRIPTION AND PURPOSE OF THE JOURNAL**

The Journal of Kharkov National University (Physical series "Nuclei, Particles, Fields") is a journal covering elementary particles physics, nuclear physics, plasma physics and technologies, solid state physics and radiation physics. The Journal publishes research articles, short communications, review articles and scientific book reviews.
Issues per year – 4.

**EDITORIAL BOARD**

**Editor-in-Chief -** Zalubovsky I.I., Corresponding member of Ukrainian National Academy of Science, D.Sc., Professor
**Deputy Chief Editor -** Azarenkov N.A., Academician of Ukrainian National Academy of Science, D.Sc., Professor
**Deputy Chief Editor - Girka I.A.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Executive Secretary -** Girnyk S.A., PhD

**Adamenko I.N.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Berezhnoy Yu.A.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Bizyukov A.A.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Budagov Yu.A.**, D.Sc., Laboratory of nuclear problems, Joint Institute of Nuclear Research, Dubna, Russia
**Duplij S.A.**, D.Sc., Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Garkusha I.E.,** D.Sc., Professor, Director of Institute of Plasma Physics NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"
**Khodusov V.D.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Kondratenko A.N.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin
**Lazurik V.T.**, D.Sc., Kharkiv national university V.N. Karazin
**Merenkov M.P.**, D.Sc., NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"
**Jean-Marie Noterdaeme**, PhD., Professor, Max Planck Institute for Plasma Physics, Germany and Universiteit Gent, Belgium
**Ostrikov K.**, D.Sc., Founding Leader, Plasma Nanoscience Centre Australia (PNCA), CEO Science Leader, CSIRO Materials Science and Engineering, Clayton, Australia
**Peletminsky S.V.**, Academician of Ukrainian National Academy of Science, D.Sc., Professor, NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"
**Slyusarenko Yu.V.**, Corresponding member of Ukrainian National Academy of Science, D.Sc., Professor, NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"
**Smolyakov A.**, D.Sc., Professor, Department of Physics and Engineering Physics, University of Saskatchewan, Canada
**Shul'ga N.F.**, Academician of Ukrainian National Academy of Science, D.Sc., Professor, NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"
**Tkachenko V.I.**, D.Sc., Professor, Director "Renewable Energy Sources and Sustainable Technology" Science and Production Establishment, NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"
**Tolok V.T.**, Corresponding member of Ukrainian National Academy of Science, D.Sc., Professor, NPTC, Ministry of Education and Science of Ukraine
**Tovstiak V.V.**, D.Sc., Professor, Kharkiv national university named V.N. Karazin

**Editorial office address**
High Technology Institute
Kharkov National University named V.N. Karazin
Kurchatov av., 31, office 402, Kharkiv, 61108, Ukraine
Phone: +38-057-335-18-33
E-mail: visnyk.npf@univer.kharkov.ua
Web-page: http://www-nuclear.univer.kharkov.ua

**ПРОФІЛЬ ЖУРНАЛУ ТА МЕТА ВИДАННЯ**

"Вісник Харківського національного університету" (серія: фізична «Ядра, частинки, поля») є збірником наукових праць з фізики елементарних частинок, ядерної фізики, фізики плазми та плазмових технологій, фізики твердого тіла та радіаційної фізики. Збірник публікує наукові статті, короткі повідомлення, оглядові статті та рецензії на наукові видання.
Періодичність випуску збірника – 4 рази на рік.

*Затверджено до друку рішенням Вченої ради Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна (протокол № 11 від 23 листопада 2012 р.)*

**РЕДАКЦІЙНА КОЛЕГІЯ**

**Головний редактор** – Залюбовський І.І. – чл.-кор. НАН України, д. ф.-м. наук, професор
**Заступник головного редактора** – Азарєнков М.О. – академік НАН України, д. ф.-м. наук, професор
**Заступник головного редактора – Гірка І.О.** – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Відповідальний секретар** – Гірник С.А. – к. ф.-м. наук

**Адаменко І.М**. – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Бережной Ю.А**. – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Бізюков О.А.** – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Будагов Ю.А**. – д. ф.-м. наук, професор, Лабораторія ядерних проблем ім. В.П. Джелєпова, ОІЯД м.Дубна, Росія
**Дуплій С.А.** – д. ф.-м. наук, член Американської і Європейської физичної спілки, член Ассоціації математичної фізики, ХНУ імені В.Н. Каразіна
**Гаркуша І.Є.** – д. ф.-м. наук, професор, директор Інституту фізики плазми ННЦ ХФТІ
Кондратенко А.М. – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Лазурик В.Т.** – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Меренков М.П.** – д. ф.-м. наук, ННЦ ХФТІ
**Жан-Мари Нотердам** – доктор, професор, Інститут фізики Макса-Планка Німеччина, Університет м. Гент, Бельгія
**Остриков К.** – д. ф.-м. наук, професор, Головний виконавчий директор та науковий співробітник Організації Співдружності з наукових і промислових досліджень (CSIRO), Клайтон, Австралія
**Пелетмінський С.В.** – акад. НАН України, д. ф.-м. наук, професор, ННЦ ХФТІ
**Слюсаренко Ю.В.** – чл.-кор. НАН України, д. ф.-м. наук, професор, ННЦ ХФТІ
**Смоляков А.** – д. ф.-м. наук, професор, факультет фізики та інженерної фізики, Саскачеванський університет, Канада
**Ткаченко В.І.** д. ф.-м. наук, професор, директор Науково-виробничого комплексу "Відновлювані джерела енергії та ресурсозберігаючі технології", ННЦ ХФТІ
**Товстяк В.В.** – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Толок В.Т.** – чл.-кор. НАН України, д. ф.-м. наук, професор, НФТЦ МОН, НАНУ
**Ходусов В.Д.** – д. ф.-м. наук, професор, ХНУ ім. В.Н. Каразіна
**Шульга М.Ф.** – академік НАН України, д. ф.-м. наук, професор, ННЦ ХФТІ

**Адреса редакції**
Інститут високих технологій
Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
пр. Курчатова, 31, кімната 402, м. Харків, 61108, Україна
Телефон: +380-57-335-18-33
E-mail: visnyk.npf@univer.kharkov.ua
Web-сторінка: http://www-nuclear.univer.kharkov.ua

Усі статті прорецензовано.
Свідоцтво про державну реєстрацію КВ № 11825-696 ПР від 4.10.2006.

© Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, оформлення, 2012

**CONTENT**


*Issues*

**S.N. Afanas'ev**
The $^{8}$Be ground state formation in $^{16}$O(γ,4α)-reaction **4**

**M.Yu. Kovalevsky, V.A. Kutovoy, L.B. Logvinova**
On mechanisms of relaxation processes of heat and mass transfer in structured heterogeneous media **10**

**V.M. Ostroushko**
Electron energy increase in stochastically given field and gas discharge **17**

**O.S. Deiev**
Measurements of angular distributions of electron bremsstrahlung method based on CXR **24**

**I. Marushchenko, N.A. Azarenkov**
Relativistic transport equations in toroidal plasmas **29**

**A.Yu. Buki, S.A. Kalenik, I.L. Semisalov, I.S. Timchenko, A.S. Zadvorny, M.G. Shevchenko, V.J. Kasilov, S.P. Gokov, S.S. Kochetov, G.I. Ledovskoy, P.L. Makhnenko**
The prototipe of Bonner neutron spectrometer of activation type **35**

**V.A. Lisovskiy, I.A. Bogodielnyi**
Ignition and burning modes of DC hollow cathode discharge **43**

**S.S. Geraschenko, V.I. Gritsenko, V.I. Muratov, V.D. Fedorchenko**
Experimental study of transition radiation by nonrelativistic electron bunches on different electrodynamic heterogeneities **54**

**I.G. Marchenko, I.I. Marchenko**
Anomalous growth of the diffusion in space-periodic systems with a low energy dissipation **62**

**B.V. Borts, I.G Goncharov, A.V. Mazilov, S.F. Skoromnaya, V.I. Tkachenko**
Materials and sample preparation for simulation of supercritical fluid extraction of uranium in carbon dioxide medium **69**

**I.D. Fedorets, N.P. Khlapova, N.P. Dikiy, E.P. Medvedeva, D.V. Medvedev, V.L. Uvarov, D.S. Bakay**
Effects of gamma-activation and functionality characteristics of superdispersed $ZrO_2$ –catalystes in methanol conversion **77**

**V.G. Kirichenko, O.V. Kovalenko**
Structural features and spin waves in thin films of yttrium-iron garnet **85**

**V.I. Golota, L.M. Zavada, D.V. Kudin, S.V. Rodionov**
Development of technology for capacitive deionization water **98**

**V.V. Vasylyev, A.I. Kalinichenko, V.E. Strel'nitskij**
Influence of parameters of ion deposition in pulsed mode on characteristics of diamondlike coating **102**

**V.S. Trubnikov**
Charged pions production in heavy-ion collisions at SPS energy **107**

*Obituaries*

**In memory of Volodymyr Tarasovych Tolok** **111**


**ЗМІСТ**


*Статті*

**С.М. Афанасьєв**
Утворення основного стану ядра $^{8}$Be в реакції $^{16}$O(γ,4α) **4**

**М.Ю. Ковалевський, В.А. Кутовий, Л.В. Логвінова**
Про механизм релаксаційних процесів термо-масопереносу у гетерогенному середовищі зі структурою **10**

**В.М. Остроушко**
Збільшення енергії електрона у стохастично даному полі та газовий розряд **17**

**О.С. Деєв**
Вимірювання кутів розподілу гальмівного випромінювання електронів методом на основі ХРВ **24**

**І.М. Марущенко, М.О. Азарєнков**
Релятивістські рівняння переносу у тороідальной плазмі **29**

**О.Ю. Буки, С.О. Каленик, І.Л. Семисалов, І.С. Тимченко, А.С. Задворний, М.Г. Шевченко, В.Й. Касілов, С.П. Гоков, С.С. Кочетов, Г.І. Лєдовской, П.Л. Махненко**
Дослідницький зразок нейтронного спектрометру Бонера активаційного типу **35**

**В.О. Лісовський, І.А. Богодельний**
Запалювання та режими горіння розряду постійного струму з порожнистим катодом **43**

**С.С. Геращенко, В.І. Гриценко, В.І. Муратов, В.Д. Федорченко**
Експериментальне дослідження перехідного випромінювання нерелятивістськими електронними згустками на різних електродинамічних неоднорідностях **54**

**І.Г. Марченко, І.І. Марченко**
Аномальне зростання дифузії у просторово-періодичних системах з малою дисипацією енергії **62**

**Б.В. Борц, І.Г. Гончаров, О.В. Мазілов, С.Ф. Скоромна, В.І. Ткаченко**
Матеріали і пробопідготовка для моделювання надкритичної флюїдної екстракції урану в середовищі діоксиду вуглецю **69**

**І.Д.Федорець, Н.П.Хлапова, М.П. Дикий, О.П. Медведєва, Д.В. Медведев, В.Л. Уваров, Д.С. Бакай**
Ефекти гамма - активації і функціональні характеристики $ZrO_2$ - каталізаторів в каталітичній конверсії метанолу **77**

**В.Г. Кіріченко, О.В. Коваленко**
Структурні особливості а та спінові хвилі в тонких плівках ферит-гранатів **85**

**В.І. Голота, Л.М. Завада, Д.В. Кудін, С.В. Родіонов**
Розробка технології ємнісної деіонізації води **98**

**В.В. Васіль'єв, О.І. Калініченко, В.Є. Стрельницький**
Вплив параметрів іонного осадження в імпульсному режимі на характеристики алмазоподібного покриття **102**

**В.С. Трубніков**
Утворення заряджених піонів у зіткненнях важких іонів при енергіях прискорювача SPS **107**

*Некрологи*

**Пам'яті Володимира Тарасовича Толока** **111**

*УДК 539.172.3*

# ОБРАЗОВАНИЕ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ ЯДРА $^{8}$Be В РЕАКЦИИ $^{16}$O(γ,4α)

**С.Н. Афанасьев**
*ННЦ "Харьковский физико-технический институт"*
*ул. Академическая,1, Харьков, 61108, Украина*
*e-mail: afanserg@kipt.kharkov.ua*
Received 26 September 2012, accepted 2 November 2012

Методом диффузионной камеры в магнитном поле получены экспериментальные данные по реакции $^{16}$O(γ,4α) в энергетическом интервале от порога до 40 МэВ. Выполнен анализ распределений по энергии возбуждения системы 2α-частиц и выделен канал образования основного состояния ядра $^{8}$Be. Частицы, образующие ядро $^{8}$Be, идентифицированы как $\alpha_3$ и $\alpha_4$. Измерено парциальное сечение этого канала в зависимости от энергии γ-кванта. В сечении наблюдается четыре резонанса. Обнаружена корреляция между энергией, соответствующей *i*-му максимуму парциального сечения и энергией возбуждения $E_0(^{8}Be)$ *i*–го уровня ядра $^{8}$Be: $E_\gamma^i(^{16}O) = E_0^i(^{8}Be) + \varepsilon(^{16}O)$, где $\varepsilon(^{16}O)$ - порог реакции $^{16}$O(γ,4α). Качественно результаты объяснены в модели поглощения γ-кванта виртуальным квазибериллием. При анализе распределений по кинетической энергии α-частиц, сопутствующих образованию основного состояния ядра $^{8}$Be, определено, что $\alpha_1$-частица вышла из квазибериллия, а $\alpha_2$-частица совместно с $\alpha_3$- и $\alpha_4$-частицами образует промежуточное ядро $^{12}$C.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** диффузионная камера, фоторасщепление, энергия возбуждения, квазибериллий.

## THE $^{8}$Be GROUND STATE FORMATION IN $^{16}$O(γ,4α)-REACTION

**S.N. Afanas'ev**
*NSC "Kharkiv Institute of Physics and Technology"*
*Akademicheskaya st. 1, Kharkiv, 61108, Ukraine*

The reaction $^{16}$O(γ,4α) was studied with the aid of a diffusion chamber placed in a magnetic field in the energy range $E_\gamma < 40$ MeV. The ground of the $^{8}$Be nucleus manifested in the distribution of events with respect to the excitation energy of two alpha particles. A particle was identified as $\alpha_3$ and $\alpha_4$. The partial cross section for the channel formation ground state $^{8}$Be was measured versus the photon energy. Fourth resonances have been observed in the cross section. The energy corresponding to the *i*th maximum of the partial cross section and the excitation energy of the *i*th level of the $^{8}$Be nucleus have been found to be correlated as $E_\gamma^i(^{16}O) = E_0^i(^{8}Be) + \varepsilon(^{16}O)$, where $\varepsilon(^{16}O)$ is the reaction $^{16}$O(γ,4α) threshold. Qualitatively, the results have been explained on the basis of the model of photon absorption by a quasiberyllium. At the analysis of distributions on kinetic energy of α-particles it is certain, that $\alpha_1$-particle escapes from the $^{12}$C nucleus, while the remaining $\alpha_2$-particles with $\alpha_3$- and $\alpha_4$-particles form an excited nucleus $^{12}$C.
**KEY WORDS:** diffusion chamber, photodisintegration, the excitation energy, quasiberyllium.

## УТВОРЕННЯ ОСНОВНОГО СТАНУ ЯДРА $^{8}$Be В РЕАКЦІЇ $^{16}$O(γ,4α)

**С.М. Афанасьєв**
*ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут»*
*вул. Академічна, 1, Харків, 61108, Україна*

Методом дифузійної камери в магнітному полі отримані експериментальні дані реакції $^{16}$O(γ,4α) в енергетичному інтервалі від порогу до 40 МеВ. Виконано аналіз розподілу за енергією збудження системи 2α-частинок і виділено канал утворення основного стану ядра $^{8}$Be. Частинки, що утворюють ядро $^{8}$Be, ідентифіковані як $\alpha_3$ і $\alpha_4$. Виміряно парціальний переріз цього каналу в залежності від енергії γ-кванта. У перерізі спостерігаються чотири резонанси. Встановлено, що енергія, яка відповідає *i*-му максимуму парціального перерізу, і енергія збудження $E_0(^{8}Be)$ *i*–го рівня ядра $^{8}$Be корелюють: $E_\gamma^i(^{16}O) = E_0^i(^{8}Be) + \varepsilon(^{16}O)$, де $\varepsilon(^{16}O)$ - поріг реакції $^{16}$O(γ,4α). Якісно результати пояснені в моделі поглинання γ-кванта віртуальним квазібериліем. При аналізі розподілів за кінетичною енергією α-частинок, які виникли не в разі утворення основного стану ядра $^{8}$Be, отримано, що $\alpha_1$-частинка вийшла з віртуального квазіберилію, а $\alpha_2$-частинка разом з $\alpha_3$- і $\alpha_4$-частинками утворює проміжне ядро $^{12}$C.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** дифузійна камера, фоторозщеплення, енергія збудження, квазіберилій.

Выполнено исследование реакции полного α-частичного фоторасщепления ядра $^{16}$O:

$$\gamma + {}^{16}O \rightarrow 4\alpha,\ \varepsilon(^{16}O) = 14{,}45\ \text{МэВ}, \qquad (1)$$

где $\varepsilon(^{16}O)$ – энергетический порог реакции. Реакция может быть использована для проверки Nα-частичной модели ядра $^{16}$O, а также для получения дополнительных сведений о характере α-α взаимодействия. Результаты представляют интерес как для многотельной проблемы [1], так и для астрофизики и термоядерного синтеза [2]. В многочастичных фотоядерных реакциях с несколькими α-частицами в конечном состоянии на промежуточном этапе наиболее вероятно образование ядра $^{8}$Be в основном или в одном из возбужденных состояний. А реакция α + $^{8}$Be благодаря существованию уровня ядра $^{12}$C возле порога реакции способствовала существенному продвижению в построении теории эволюции звезд [3].

Экспериментальные данные по реакции $^{16}$O(γ,4α) имеют низкую статистику [4-7] и существенный разброс данных по полному сечению. В ранних работах, в основном, выполнены оценки относительного вклада каналов

© Afanas'ev S.N., 2012

образования промежуточных возбужденных ядер. Процесс фоторасщепления ядра $^{16}$O на α-частицы может идти через два механизма: непосредственный развал на взаимодействующие между собой α-частицы и двухэтапный распад с образованием промежуточных ядер. До настоящего времени не сделан определенный выбор между ними. В рамках последовательного двухчастичного типа распада возможно образование возбужденных ядер $^{12}C^{*}$ и $^{8}Be^{*}$. Возможность выделения канала с образованием определенного возбужденного состояния промежуточного ядра может помочь в определении механизма взаимодействия γ-кванта с ядром-мишенью.

Все экспериментальные данные получены с помощью фотоядерных эмульсий, поэтому представляет интерес исследование реакции другим методом.

Цель работы – определить механизм взаимодействия γ-кванта с ядром $^{16}$O в канале образования основного состояния ядра $^{8}$Be.

## МЕТОД ЭКСПЕРИМЕНТА

Экспериментальные данные по реакции $^{16}$O(γ,4α) получены методом диффузионной камеры [8] в магнитном поле на пучке тормозных фотонов с максимальной энергией $E_{\gamma}^{макс}$ = 150 МэВ [9]. Мягкая компонента тормозного спектра убиралась бериллиевым фильтром толщиною 2,5 рад. ед. Спектральное распределение фотонов бралось шиффовским, исправленным на неравномерное ослабление спектра фильтром. С целью уменьшения плотности мишени камера заполнялась смесью кислорода и гелия в пропорции 1:7 до давления 1,5 ата. Это позволило иметь приемлемые для измерений длины треков медленных остаточных ядер и достаточную четкость их изображения на фотопленке при давлениях близких к атмосферному. Благодаря совмещению $4\pi$-детектора с мишенью малой плотности экспериментальный метод дал возможность исследовать реакцию $^{16}$O(γ,4α) практически от ее порога. В эксперименте с диффузионной камерой имеется ряд преимуществ: практически чистая мишень и из-за ее малой плотности - низкий порог регистрации α-частиц, магнитное поле и ионизационные потери позволяют надежнее идентифицировать продукты реакции. Кинематические особенности реакции позволяют в большинстве случаев ещё на первом этапе (при визуальном отборе) идентифицировать событие, принадлежащее этой реакции.

Для обработки отбирались четырехлучевые звезды, лучи которых принадлежат двухзарядным частицам. Идентификация событий производилась после измерений треков на полуавтоматических приборах типа ПУОС. Для событий реакции $^{16}$O(γ,4α) можно ожидать получение баланса поперечного импульса. В зачет брались события, небаланс импульсов у которых не превышал 15 МэВ/с. Энергия γ-кванта вычислялась как сумма кинетических энергий четырех α-частиц и порога реакции.

Из-за недостаточной длины проекции трека на медианную плоскость не удалось измерить с нужной точностью кинематические параметры частиц, не остановившихся в рабочем объеме камеры и вышедших под углом меньшим, чем 50°, к вектору напряженности магнитного поля. На необработанные по этой причине события введена геометрическая поправка, вычисленная в предположении азимутальной изотропии, так как пучок γ-квантов не поляризован.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

### Основное состояние ядра $^{8}$Be

Распределение пар α-частиц по их энергии возбуждения [10]

$$E_x(\alpha\alpha) = M_{eff}(\alpha\alpha) - 2m_{\alpha}, \qquad (2)$$

где $M_{eff}(\alpha\alpha)$ –эффективная масса, равная полной энергии пары α-частиц в системе их покоя, а $m_{\alpha}$ - масса α-частицы, представлено на рис. 1а гистограммой. Шаг гистограммы – 0,2 МэВ.

Из-за неразличимости α-частиц в реакции не удается выделить пару, образовавшуюся в результате распада ядра $^{8}$Be. Для каждого события можно вычислить по шесть возможных величин энергии возбуждения системы 2α-частиц (перебираются все комбинации пар α-частиц). Поэтому в экспериментальном распределении событий по энергии возбуждения двух α-частиц могут возникать одна резонансная (если образуется ядро $^{8}$Be) и пять фоновых αα-комбинации. На рис. 1а при построении распределения для каждого события представлено все шесть значений.

Экспериментальное распределение сравнивалось с фазовым [10]:

$$f(E_x) \propto E_x^{\frac{3}{2}k-\frac{5}{2}} \cdot (E_x^{max}-E_x)^{\frac{3}{2}(n-k)-1}, \qquad (3)$$

где n – число конечных частиц, k – число частиц, образующих резонанс (k<n), $E_x^{max}$ – максимально возможное значение энергии возбуждения системы k частиц, равное максимальной энергии γ-кванта на данном интервале минус порог реакции. В данном случае n=4, а k=2. Фазовое распределение вычислено для тормозного пучка суммированием распределений для узких интервалов, где энергия γ-кванта считалась постоянной. Площадь под фазовой кривой пронормирована на число событий, приходящихся на каждый интервал. Фазовое распределение на рис. 1а показано штриховой кривой. Отличие экспериментального распределения от фазового, особенно в околопороговой области, позволяет сделать вывод, что в реакции $^{16}$O(γ,4α) образуются

возбужденные состояния ядра $^8$Be.

Околопороговой резонанс (при энергии возбуждения до 0,2 МэВ на рис. 1а), показан на рис. 1б темными кружками с шагом 10 кэВ. Ошибки – статистические. В основном, вклад в этот резонанс дает только одна из шести возможных αα-комбинаций. В случае 1,85 % событий возможен вклад в эту энергетическую область более чем одной комбинации события. Наличие нескольких комбинаций проявляется при малых энергиях фотона и в этих комбинациях одной из α-частиц является самая низкоэнергетическая α-частица. Установлено, что только в одном событии возможен случай, когда две комбинации с разными α-частицами проявляются в этом резонансе. На рис. 1б светлыми кружками представлено распределение по $E_x(\alpha\alpha)$ для других пяти αα-комбинаций при $E_x(\alpha\alpha) < 0{,}5$ МэВ с шагом 10 кэВ. Видно, что зона перекрытия резонансной пары и фоновых 5 пар незначительна и резонансная пара с достаточной достоверностью выделяется.

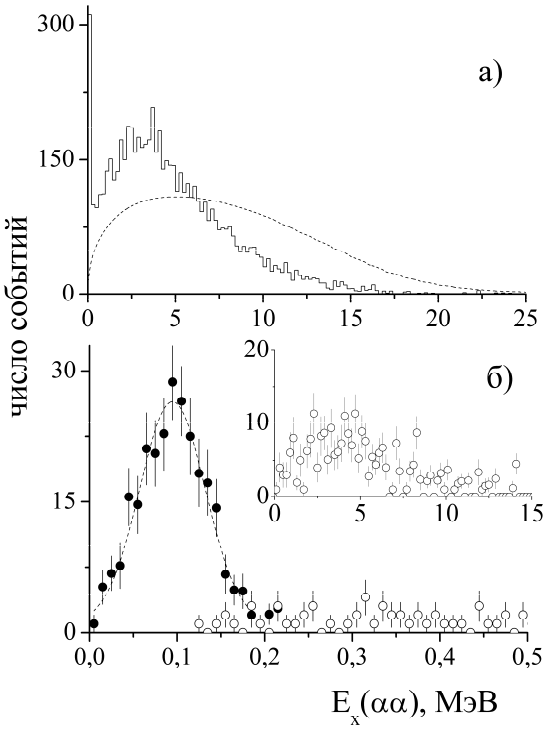



Рис. 1. Распределение пар α-частиц по их энергии возбуждения.

а) гистограмма - все комбинации, штриховая линия – фазовое распределение 2 из 4 (ф. (3)), б) ● - основное состояние ядра $^8$Be, ○ - пара α-частиц, вышедших не из ядра $^8$Be в основном состоянии, штриховая линия – подгонка функцией Брейт-Вигнера.

Максимум при $E_x(\alpha\alpha) < 0{,}2$ МэВ подогнан распределением Брейт-Вигнера с параметрами $E_0^{экс} = 0{,}095 \pm 0{,}003$ МэВ, $\Gamma = 0{,}088 \pm 0{,}007$ МэВ. Результаты подгонки представлены штриховой кривой. Из данных спектрометрических измерений [11] известно, что основное состояния (ОС) ядра $^8$Be нестабильно и имеет максимум при $E_0 = 0{,}092$ МэВ с шириной $\Gamma = 5{,}57$ эВ. Следовательно, концентрацию событий в районе 0,1 МэВ можно объяснить образованием ОС $^8$Be. Наблюдаемая в данном эксперименте ширина резонанса является аппаратурной.

События, у которых одна из пар α-частиц соответствует образованию ОС ядра $^8$Be, надежно выделяются и в дальнейшем будет выполнен анализ только этого парциального канала, относительный выход его – 25,44 %. В событиях, которые обсуждались выше (1,85 %) резонансной парой считалась та, у которой значение $E_x(\alpha\alpha)$ было ближе к экспериментальному значению $E_0^{экс}$. Для пары α-частиц, вышедших после распада ОС ядра $^8$Be, в дальнейшем присвоим обозначения $\alpha_3$ и $\alpha_4$.

На внутренней вставке рис. 1б светлыми кружками представлено распределение по энергии возбуждения пары α-частиц $E_x(\alpha\alpha)$, сопутствующих образованию ядра $^8$Be в ОС. Распределение приведено при энергии < 15 МэВ с шагом 0,2 МэВ. Не наблюдается резонансной структуры, соответствующей образованию другого ядра $^8$Be в основном или возбужденном состоянии. Вид распределения подобен фазовому, приведенному на рис. 1а штриховой кривой. Можно сделать вывод, что процесс $\gamma + {}^{16}O \rightarrow {}^8Be^* + {}^8Be^{oc}$ не является преобладающим и при распаде образуется только одно ядро $^8$Be, соответствующее ОС: $\gamma + {}^{16}O \rightarrow \alpha + \alpha + {}^8Be^{oc} \rightarrow \alpha + \alpha + \alpha_3 + \alpha_4$.

**Парциальное сечение канала образования ОС**

На рис. 2а точками представлено парциальное сечение канала образования ОС ядра $^8$Be при энергиях от порога реакции до 40 МэВ с шагом 1 МэВ. Определение абсолютного сечения выполнено с учетом поправок на необработанные события. Точки поставлены посередине интервала. Ошибки статистические.

В кривой возбуждения наблюдаются несколько максимумов. Штриховыми кривыми на рис. 2а показана подгонка сечения линейной комбинацией 4-х функций Брейт-Вигнера, в результате которой определены энергии положения максимумов $E_\gamma$ и их ширины Γ. Результаты подгонки представлены в таблице 1 в первой и второй колонках. Сплошной кривой представлена сумма 4-х функций Брейт-Вигнера.

Ранее, в работе [12] был выделен канал образования ОС ядра $^8$Be в реакции $^{12}C(\gamma,3\alpha)$ и наблюдалась подобная резонансная структура в парциальном сечении. Было показано, что качественно резонансная структура парциального сечения объясняется в рамках модели поглощения *γ*-кванта квази-*α*-частичной парой. Фотон взаимодействует с виртуальным квазибериллием, переводя его в возбужденное состояние. Положение этого состояния проявляется в сечении канала: $E_\gamma({}^{12}C) = E_0({}^8Be) + \varepsilon({}^{12}C)$, где $\varepsilon({}^{12}C)$ - порог реакции $^{12}C(\gamma,3\alpha)$, $E_0({}^8Be)$ – значение максимума уровня ядра $^8$Be. Максимумы в сечении соответствовали первому уровню ($E_0 =$

3,04 МэВ и Γ = 1,5 МэВ), второму уровню ($E_0$ = 11,4 МэВ и Γ = 3,5 МэВ), комбинации близколежащих третьего и четвертого уровней ($E_0$ = 16,63 МэВ, Γ = 0,1 МэВ и $E_0$ = 16,92 МэВ, Γ = 0,07 МэВ) и широких уровней с $E_0$ ≈20,0МэВ и Γ ≈ 2,0МэВ [11]. Ширины резонансов парциального сечения Γ($^{12}$C) совпадали с ширинами возбужденных состояний виртуального квазиядра $^{8}$Be.

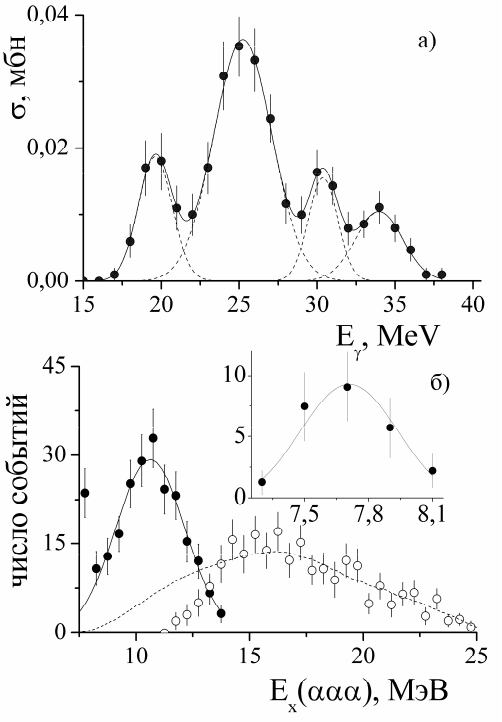



Рис. 2. Энергетические зависимости систем 4-х и 3-х α-частиц в канале образования ОС ядра $^{8}$Be.
а) Парциальное сечение. Штриховые кривые – подгонка функциями Брейт-Вигнера, сплошная кривая – сумма 4-х функций Брейт-Вигнера. б) Распределение энергии возбуждения системы 3-х α-частиц: ● – $E_x(\alpha_2\alpha_3\alpha_4)$, ○ - $E_x(\alpha_1\alpha_3\alpha_4)$, сплошная линия – подгонка функцией Брейт-Вигнера, штриховая линия – фазовое распределение.

Наличие подобной резонансной структуры и в настоящем эксперименте (реакция $^{16}$O(γ,4α)) позволяет проверить возможность такого же механизма взаимодействия γ-кванта с ядром. В таблице 1 в третьей колонке приведен расчет энергии фотона по формуле

$$E_\gamma^i(^{16}O) = E_0^i(^{8}Be) + \varepsilon(^{16}O) \quad (4).$$

Использовались положения уровней ядра $^{8}$Be, приведенные выше. Параметры неразделенных третьего и четвертого уровней брались из эксперимента (16,77±0,18 МэВ, 1,14±0,17 МэВ) [12]. Расчетные ширины, соответствующие ширинам уровней ядра $^{8}$Be, представлены в колонке 4. Предсказываемые моделью положения максимумов и ширины парциального сечения удовлетворительно согласуются с экспериментом. Таким образом, и в реакции $^{16}$O(γ,4α) обнаружена корреляция между энергией, соответствующей *i*-му максимуму сечения и энергией возбуждения $E_0$($^{8}$Be) *i*–го уровня ядра $^{8}$Be.

Таблица 1.
Резонансы в сечении канала образования ОС ядра $^{8}$Be.

| Эксперимент | | Расчет | |
|---|---|---|---|
| $E_\gamma$, МэВ | Γ, МэВ | $E_\gamma$, МэВ | Γ, МэВ |
| 19,607±0,212 | 2,144±0,328 | 17,437 | 1,5 |
| 25,232±0,165 | 3,712±0,378 | 25,877 | 3,5 |
| 30,376±0,236 | 1,826±0,504 | 31,207 | 1,14 |
| 33,977±0,389 | 3,009±0,643 | 34,437 | 2 |

В реакции $^{12}$C(γ,3α) [12] при выделении канала образования ОС ядра $^{8}$Be надежно идентифицировались все α-частицы: и пара, образующая ОС, и α-частица, первая покинувшая ядро после распада виртуального бериллия. В настоящем эксперименте из 4-х α-частиц, наблюдаемых в конечном состоянии, пока надежно идентифицированы только две α-частицы ($\alpha_3$ и $\alpha_4$), образующие ОС ядра $^{8}$Be.

**Идентификация α-частиц**

На рис. 3 представлены распределения по кинетической энергии α-частиц $T_\alpha$, сопутствующих образованию ОС ядра $^{8}$Be. Распределения построены в 4-х областях энергий γ-кванта (первая колонка табл. 2), соответствующих положениям максимумов, обнаруженным на рис. 2а и представленным в табл. 1 в 1-й и 2-й колонках.

Из рис. 3б-г видно, что α-частицы надежно разделяются по энергии. Для α-частицы, энергия которой соответствует второму максимуму (большей кинетической энергии) на рис. 3б-г, в дальнейшем присвоим обозначения $\alpha_1$. На рис. 3б определено, что на область пересечения максимумов приходится менее 3 % событий, что находится в пределах нашей статистической погрешности. Для α-частицы, энергия которой соответствует первому максимуму на рис. 3б-г, в дальнейшем присвоим обозначения $\alpha_2$. Положение и ширина первого максимума на рисунках совпадают (колонки 1 и 2 табл. 2).

Из рисунка видно, что с ростом энергии γ-кванта в распределении проявляется два максимума. На рис. 3б-г (сплошная кривая) выполнена подгонка линейной комбинацией 2-х функций Брейт-Вигнера и определены положения и ширины максимумов, которые приведены в таблице 2 в 4-6 строках. Положение первого из максимумов с ростом энергии γ-кванта не меняется (колонки 2 и 3), в то время как положение второго максимума (колонки 4 и 5) имеет тенденцию к смещению в более высокоэнергетичную область. Можно отметить, что параметры второго максимума коррелируют с параметрами возбужденных уровней ядра $^{8}$Be, и, соответственно, с энергией γ-кванта. Качественно такую зависимость можно записать как

$$T_\alpha^i = E_0^i(^{8}Be)/2 \quad (5).$$

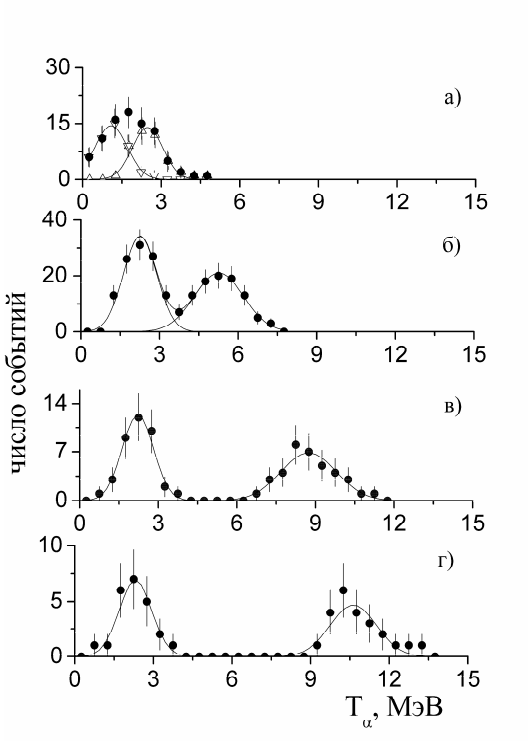



Рис. 3. Распределение по кинетической энергии α-частиц, сопутствующих образованию ОС ядра $^8$Be. Сплошные кривые – подгонка линейной комбинацией двух функций Брейт-Вигнера.

Такое поведение объясняется в рамках модели взаимодействия γ-кванта с квазибериллием. Из формулы (4) видно, что вся энергия фотона идет на возбуждение бериллия, а после распада дискретного уровня половину энергии уносит первая вылетевшая α-частица (ф. (5)).

На рис. 3а визуально не наблюдается двухрезонансной структуры. Это связано с тем, что при энергии вблизи порога эти резонансы перекрываются. На рис. 3б-г положение и ширина максимума, связанного с распределением $\alpha_2$-частицы, постоянны. Предположив, что и на рис. 3а есть такой же максимум, выполнена подгонка линейной комбинацией 2-х функций Брейт-Вигнера. Результаты подгонки приведены сплошными кривыми. Определенные таким образом положения и ширины максимумов на рис. 3а представлены в табл. 2, третья строка. В область перекрытия максимумов на рис. 3а входит 30 % событий. Разделение α-частиц в этой области энергии выполнено следующим образом: α-частице с большей кинетической энергией присвоено обозначение $\alpha_2$, а другой α-частице присвоено обозначение $\alpha_1$.

В табл. 2 в 6-й колонке представлены данные расчета кинетической энергии $T_{\alpha 1}$ по формуле (5) с использованием значений уровней ядра $^8$Be, взятых из известной компиляции [11]. Результаты удовлетворительно согласуются с экспериментом (колонка 4). Это подтверждает предположение о взаимодействии γ-кванта с виртуальным бериллием и вылете из ядра первой $\alpha_1$-частицы, уносящей половину энергии, вносимой фотоном в систему.

Таблица 2.

Положение максимумов в распределении по кинетической энергии α-частиц.

| $E_\gamma$, МэВ | $\alpha_2$ | | $\alpha_1$ | | $\alpha_1^{\text{расчет}}$ |
|---|---|---|---|---|---|
| | $T_2$, МэВ | $\Gamma_2$, МэВ | $T_1$, МэВ | $\Gamma_1$, МэВ | $T_1$, МэВ |
| < 22 | 2,28±0,10 | 1,17±0,14 | 1,19±0,11 | 1,24±0,19 | 1,52 |
| 22÷28 | 2,26±0,08 | 1,27±0,13 | 5,27±0,13 | 1,87±0,22 | 5,7 |
| 28÷32 | 2,22±0,10 | 1,19±0,14 | 8,74±0,19 | 2,11±0,32 | 8,38 |
| 32÷36 | 2,31±0,14 | 1,24±0,23 | 10,638±0,21 | 1,78±0,37 | 10,0 |

Независимость положения максимума распределения по кинетической энергии $\alpha_2$-частицы от энергии γ-кванта и идентичные значения ширин максимумов, позволяет предположить о подобном для всех интервалов энергии γ-кванта механизме образования этой частицы.

### Энергия возбуждения ядра $^{12}$C

Энергия возбуждения 3-х α-частичной системы определялась как

$$E_x(\alpha\alpha\alpha) = M_{\text{eff}}(\alpha\alpha\alpha) - 3m_\alpha, \quad (6)$$

где $M_{\text{eff}}(\alpha\alpha\alpha)$ – эффективная масса, равная полной энергии 3-х α-частиц в системе их покоя, а $m_\alpha$ - масса α-частицы. Распределение по $E_x(\alpha_2\alpha_3\alpha_4)$ представлено на рис. 2б темными кружками с шагом 0,5 МэВ. Экспериментальное распределение сравнивалось с фазовым, вычисленным по формуле (3) при n=3 и k=2. При расчете фазового распределения учитывалось, что исследуется канал образования ОС ядра $^8$Be: $\gamma + {}^{16}\text{O} \rightarrow \alpha_1 + \alpha_2 + {}^8\text{Be}^{\text{OC}}$. Фазовое распределение представлено на рис. 2б штриховой кривой. Методика вычисления фазового распределения такая же, как и для фазового распределения на рис. 1а. Фазовое распределение пронормировано на выход канала образования основного состояния ядра $^8$Be. Отличие экспериментального распределения от фазового, сильно проявившееся в околопороговой области, может свидетельствовать об образовании возбужденного ядра $^{12}$C. Сплошной кривой представлена подгонка функцией Брейт-Вигнера с параметрами $E_0^2(\alpha_2\alpha_3\alpha_4) = 10{,}628 \pm 0{,}093$ МэВ и $\Gamma^2 = 3{,}031 \pm 0{,}169$ МэВ. Наблюдаемый максимум соответствует широкому уровню ядра $^{12}$C с $E_0 = 10{,}3$ МэВ, $\Gamma = 3{,}0$ МэВ [13]. Экспериментальное значение $E_0^2(\alpha_2\alpha_3\alpha_4)$ коррелирует со значением положения первого максимума на рис. 3б-г и второго на рис. 3а (табл. 2, колонка 2):

$$T_{\alpha 2} = 2*( E_0^2(\alpha_2\alpha_3\alpha_4) - \varepsilon(^{12}\text{C}))/3, \quad (7)$$

что следует из двухчастичности кинематики реакции $^{12}\text{C}^* \rightarrow \alpha_2 + {}^8\text{Be}^{\text{OC}}$.

На внутренней вставке рис. 2б с шагом 0,1 МэВ темными кружками представлено распределение околопорогового выброса при $E_x(\alpha_2\alpha_3\alpha_4) < 8$ МэВ. Сплошной кривой представлена подгонка функций Брейт-Вигнера с параметрами $E_0^1(\alpha_2\alpha_3\alpha_4) = 7{,}708 \pm 0{,}044$ МэВ и $\Gamma^1 = 0{,}454 \pm 0{,}143$ МэВ. Значения согласуются с данными об узком $0^+_2$ состоянии ядра $^{12}$C с $E_0 = 7{,}654$ МэВ [13]. Наблюдаемая в данном эксперименте ширина резонанса $\Gamma^1$ является аппаратурной. Относительный выход уровня $0^+_2$ – 11,12 %.

На рис. 2б светлыми кружками представлено распределение по $E_x(\alpha_1\alpha_3\alpha_4)$. Распределение согласуется с фазовым и подтверждает предположение, что $\alpha_1$-частица первой вылетела из ядра кислорода и не имеет отношения к образованию ядра $^{12}$C.

Таким образом, выделен канал распада ядра кислорода на 4 α-частицы, имеющий последовательный двухчастичный тип с образованием возбужденного ядра $^{12}C^*$ на первом этапе и ОС ядра $^{8}$Be на втором: $\gamma + {}^{16}O \rightarrow \alpha_1 + {}^{12}C^* \rightarrow \alpha_1 + \alpha_2 + {}^{8}Be^{OC} \rightarrow \alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 + \alpha_4$.

## ВЫВОДЫ

Методом диффузионной камеры в магнитном поле на пучке тормозных фотонов с $E_\gamma^{макс} = 150$ МэВ исследована реакция $^{16}O(\gamma,4\alpha)$. В эксперименте использована практически чистая мишень малой плотности.

Измерено распределение событий по энергии возбуждения системы двух α-частиц. Определено, что образуется промежуточный возбужденный бериллий. Выделен канал образования основного состояния ядра $^{8}$Be, его относительный выход – 25,44 %. Идентифицированы α-частицы, соответствующие основному состоянию ядра $^{8}$Be и им присвоены обозначения $\alpha_3$ и $\alpha_4$. В распределении по энергии возбуждения $\alpha_1\alpha_2$-системы не проявляется образование возбужденного состояния ядра бериллия и сделан вывод, что не реализуется процесс $\gamma + {}^{16}O \rightarrow {}^{8}Be^* + {}^{8}Be^{oc}$.

Измерено парциальное сечение канала образования основного состояния ядра $^{8}$Be в зависимости от энергии γ-кванта. В сечении наблюдаются четыре резонанса. Подгонкой функциями Брейт-Вигнера определены энергии γ-кванта, соответствующие положению максимумов, и ширины резонансов. Обнаружена корреляция между энергией, соответствующей *i*-му максимуму сечения и энергией возбуждения $E_0(^{8}Be)$ *i*–го уровня ядра $^{8}$Be: $E_\gamma^i = E_0(^{8}Be)^i + \varepsilon(^{16}O)$, где $\varepsilon(^{16}O)$ - порог реакции $^{16}O(\gamma,4\alpha)$. Качественно результаты объяснены в модели поглощения γ-кванта виртуальным квазибериллием.

Выполнен анализ распределений по кинетической энергии α-частиц, сопутствующих каналу образования основного состояния ядра $^{8}$Be. Распределения строились в интервалах, соответствующих максимумам парциального сечения. Наблюдается наличие двух максимумов, один из которых не меняет своего расположения, в то время как положение второго максимума имеет тенденцию к смещению в более высокоэнергетичную область. Определено, что α-частица, соответствующая образованию второго максимума, является $\alpha_1$-частицей, вышедшей из виртуального квазибериллия. Наличие максимума с постоянным положением объясняется выходом $\alpha_2$-частицы, не зависящим от механизма поглощения γ-кванта ядром. Определено, что $\alpha_2$-частица совместно с $\alpha_3$- и $\alpha_4$-частицами образует промежуточное ядро $^{12}$C.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Funaki Y., Yamada T., Horiuchi H., et al. α-particles condensation in $^{16}$O studied with a full four-body orthogonality comdition model calculation // Phys. Rev. Lett. – 2008. – Vol. 101. – 082502 [4 pages].
2. Coc A., Angulo C., Vangioni-Flam E., et al. Big Bang nucleosynthesis, microwave anisotropy, and the light element abundances // Nucl. Phys. A. – 2005. – Vol. 752. – P. 522-531.
3. Thielemann F.-K., Brachwitz F., Freiburghaus C., et al. Element synthesis in stars // Prog. Part. Nucl. Phys. – 2001. – Vol. 46. – P. 5-22.
4. Goward F.K. Multiple resonance in photodisintegration cross sections // Proc. Phys. Soc. A. – 1952. – Vol. 65. – P. 671-672.
5. Millar C.H. Photo-alpha reactions in nuclear emulsions // Can. J. Phys. – 1953. – Vol. 31. – P. 723—757.
6. Toms M.E. Photoalpha reactions below 21.5 MeV with $^{14}$N and $^{16}$O // Nucl. Phys. – 1964. – Vol. 54. – P. 625-640.
7. Golubev R.A., Kirichenko V.V., Lapin N.I. i dr. Metodika obrabotki eksperimental'nykh dannykh po reaktsiyam mnogochastichnogo fotorasshchepleniya legchayshikh yader 12S i 16O // Preprint NNTs KhFTI. – 1992. – №92-36. – S. 1-14.
8. Arkatov Yu.M., Vatset P.I., Voloshchuk V.I. i dr. Ustanovka dlya izucheniya fotoyadernykh reaktsiy // PTE. – 1969. – №3. – C. 205.
9. Arkatov Yu.M., Vatset P.I., Voloshchuk V.I. i dr. Metod obrabotki stereofotografiy s diffuzionnoy kamery // Khar'kov: Preprint KhFTI AN USSR. – № 70-37. – 1970. – 24 S.
10. Baldin A.M., Gol'danskiy V.I., Maksimenko V.M., Rozental' I.L. Kinematika yadernykh reaktsiy // M.: Atomizdat. – 1968. – 456 c.
11. Tilley D.R., Kelley J.H., Godwin J.L., et al. Energy levels of light nuclei A = 8, 9, 10 // Nucl. Phys. A. – 2004. – Vol. 745. – P. 155—362.
12. Afanas'ev S.N., Khodyachikh A.F. O mekhanizme obrazovaniya vozbuzhdennykh sostoyaniy yadra 8Ve v reaktsii 12S(□,3□) // Yadernaya Fizika. – 2008. – T. 71, №11. – S. 1859—1869.
13. Ajzenberg-Selove F. Energy levels of light nuclei A=11-12 // Nucl. Phys. A. – 1990. – Vol. 506. – P. 1-158.

*УДК 531.3*

# О МЕХАНИЗМАХ РЕЛАКСАЦИОННЫХ ПРОЦЕССОВ ТЕРМО-МАССОПЕРЕНОСА В ГЕТЕРОГЕННЫХ СРЕДАХ СО СТРУКТУРОЙ

**М.Ю. Ковалевский** [1,2] **, В.А. Кутовой** [1] **, Л.В. Логвинова** [2]
[1]*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»*
*Украина, 61108, Харьков, Академическая, 1*
*e-mail: kutovoy@kipt.kharkov.ua*
[2]*Белгородский государственный национальный исследовательский университет*
*Россия, 308015, Белгород, Победы 85*
*e-mail: mikov51@mail.ru*
Received 25 July, accepted 5 November 2012

Изучено взаимное влияние процессов термо- и массопереноса на геометрию неоднородной микроструктуры в конденсированной среде. Термодинамика таких состояний описывается, наряду со стандартными параметрами, дополнительными физическими величинами, которые задают форму и размер структурных элементов среды. Получены релаксационные нелинейные уравнения динамики и обсуждена их связь с феноменологической теорией сушки гетерогенных сред. Показано, что кинетические коэффициенты, связанные с внутренней структурой, описывают новые механизмы релаксации в среде.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** конденсированные среды, релаксационная динамика, кинетические коэффициенты, структура, сушка.

## ON MECHANISMS OF RELAXATION PROCESSES OF HEAT AND MASS TRANSFER IN STRUCTURED HETEROGENEOUS MEDIA

**M.Yu. Kovalevsky[1,2], V.A. Kutovoy[1], L.B. Logvinova[2]**
*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"*
*1 Akademicheskaya str., Kharkov, 61108, Ukraine*
*Belgorod State University*
*85 Pobedy, Belgorod, 308015, Russia*
There have been investigated the mutual effect of heat and mass transfer processes on the geometry of inhomogeneous microstructure in a condensed medium. The thermodynamics of such states is described along with the standard parameters, additional physical quantities, which set the form and dimension of extended structural elements of the medium. The nonlinear relaxation equations of dynamics have been obtained, and their relationship with phenomenological theory of drying heterogeneous media has been discussed. It was shown that kinetic coefficients, associated with internal structure describe relaxation mechanisms in the media.
**KEY WORDS:** condensed matter, relaxation dynamics, kinetic coefficients, structure, drying.

## ПРО МЕХАНІЗМ РЕЛАКСАЦІЙНИХ ПРОЦЕСІВ ТЕРМО-МАСОПЕРЕНОСУ У ГЕТЕРОГЕННОМУ СЕРЕДОВИЩІ ЗІ СТРУКТУРОЮ

**М.Ю. Ковалевський[1,2], В.О. Кутовий[1], Л.В. Логвінова[2]**
[1]*Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»*
*Україна, 61108, Харків, Академічна, 1*
[2]*Білгородський державний національний дослідницький університет*
*Росія, 308015, Білгород, Перемоги 85*
Вивчено взаємний вплив процесів термо- і масопереносу на геометрію неоднорідної мікроструктури в конденсованому середовищі. Термодинаміка таких станів описується, поряд зі стандартними параметрами, додатковими фізичними величинами, які задають форму і розмір структурних елементів середовища. Отримано релаксаційні нелінійні рівняння динаміки і обговорено їх зв'язок з феноменологічною теорією сушіння гетерогенних середовищ. Показано, що кінетичні коефіцієнти, пов'язані із внутрішньою структурою і описують нові механізми релаксації в середовищі.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** конденсовані середовища, релаксаційна динаміка, кінетичні коефіцієнти, структура, сушіння.

Гетерогенные среды обладают различного рода микроструктурой, от которой зависит внутреннее состояние среды. Внешнее температурное или иное воздействие способствуют образованию и развитию различного рода микроструктур. Вследствие их подвижности, взаимодействия друг с другом и с другими несовершенствами среды, в материалах возникают линейные, плоские и объемные дефекты различной формы и размера. Наличие внутренней микроструктуры приводит к изменению локального состояния среды и процессов переноса в ней. Такого рода процессы в гетерогенных средах характеризуются, как конвективными, так и упругими степенями свободы. Трудности физического описания динамики таких сред обусловлены тем, что при тепло- массопереносе наличие внутренней микроструктуры существенно влияет на эти процессы. С другой стороны эти же процессы переноса влияют на структуру. Поэтому актуальным вопросом является построение такой физической модели описания динамических процессов среды, которая учитывала бы такое взаимное влияние.

© Kovalevsky M.Yu. , Kutovoy V.A., Logvinova L.B., 2012

## СТРУКТУРА СРЕДЫ И СОКРАЩЕННОЕ ОПИСАНИЕ НЕРАВНОВЕСНЫХ ПРОЦЕССОВ

В процессе сушки многих материалов, наряду с явлениями термо- и массопереноса, происходит изменение геометрических характеристик микроструктуры среды. Для описания таких неравновесных процессов обычно используется диффузионное приближение, при котором влияние структуры на процессы переноса не учитывается [1-5]. Это приводит к необходимости проведения соответствующей модификации теории. При этом в описании разнообразных процессов сушки необходимо также учитывать временную и пространственную эволюцию структурных элементов среды. Изменение конфигурации и геометрических размеров внутренней микроструктуры ведет к изменению макроскопических характеристик среды и процессов переноса.

Изменения микроструктуры в объеме всей среды, как правило, носят относительно медленный характер, поэтому их геометрические характеристики могут быть рассмотрены как дополнительные термодинамические параметры, которые макроскопически полно задают состояние конденсированных сред. Такими величинами в частности являются геометрические размеры микроструктурных элементов. К ним относятся векторы кристаллической решетки, размеры дефектов, оси анизотропии среды, угол между этими осями и другие параметры, характеризующие геометрию микроструктуры [6-10]. Эти параметры в общем случае могут иметь скалярный, векторный или тензорный характер.

Целью настоящего исследования является изучение взаимного влияния формы и размера неоднородной микроструктуры на релаксационные процессы термо- и массопереноса в реологической среде. Основой нашего рассмотрения является идеология сокращенного описания [11]. Динамическое поведение конденсированных сред со структурой рассмотрено на том этапе эволюции, когда внутренняя микроструктура сформировалась и система находится в локально-равновесном состоянии. Дальнейшая эволюция физической системы идет согласованным образом, так что процессы переноса и изменения структуры взаимосвязаны.

При построении динамических уравнений механики сплошных сред важную роль играют законы сохранения, тесно связанные со свойствами симметрии гамильтониана. Набор аддитивных интегралов движения среды состоит из гамильтониана, импульса и числа частиц $\gamma_a = H, P_k, N \equiv \int d^3x \zeta_a(\mathbf{x})$, ( $a = 0, k, 4$; $k = 1,2,3$ ). Законы сохранения в дифференциальной форме имеют вид

$$\dot{\zeta}_a(\mathbf{x}) = -\nabla_k \zeta_{ak}(\mathbf{x}) \tag{1}$$

В правую сторону уравнения (1) входят величины $\zeta_{ak}(\mathbf{x}) \equiv q_k(\mathbf{x}), t_{ik}(\mathbf{x}), j_k(\mathbf{x})$, являющиеся плотностями потоков аддитивных интегралов движения: $\zeta_{0k}(\mathbf{x}) \equiv q_k(\mathbf{x})$ - плотность потока энергии, $\zeta_{ik}(\mathbf{x}) \equiv t_{ik}(\mathbf{x})$ - плотность потока импульса, $\zeta_{4k}(\mathbf{x}) \equiv j_k(\mathbf{x})$ - плотность потока числа частиц. Имеет место представление плотности потоков аддитивных интегралов движения в терминах скобок Пуассона от соответствующих плотностей $\zeta_a(\mathbf{x})$ [11]:

$$\zeta_{ak}(\mathbf{x}) = -\delta_{ak}\varepsilon(\mathbf{x}) + \int d^3x' x_k' \int_0^1 d\lambda \{\zeta_a(\mathbf{y}), \varepsilon(\mathbf{y}')\}, \qquad a \neq 0.$$

$$\zeta_{0k}(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}\int d^3x' x_k' \int_0^1 d\lambda \{\varepsilon(\mathbf{y}), \varepsilon(\mathbf{y}')\}, \tag{2}$$

$$. \ (\mathbf{y} \equiv \mathbf{x} + \lambda \mathbf{x}', \mathbf{y}' \equiv \mathbf{x} - (1-\lambda)\mathbf{x}').$$

При получении соотношений (2) учтены свойства симметрии гамильтониана

$$\{N, \varepsilon(\mathbf{x})\} = 0, \qquad N \equiv \int d^3x n(\mathbf{x}), \ .$$

$$\{P_i, \varepsilon(\mathbf{x})\} = \nabla_i \varepsilon(\mathbf{x}), \qquad P_i \equiv \int d^3x \pi_i(\mathbf{x}), \ . \tag{3}$$

$$\{L_i, \varepsilon(\mathbf{x})\} = \varepsilon_{ikl} x_k \nabla_l \varepsilon(\mathbf{x}), \qquad L_i \equiv \varepsilon_{ikl} \int d^3x x_k \pi_l(\mathbf{x}),$$

здесь $L_i$ - орбитальный момент. Первое соотношение отражает свойство фазовой инвариантности гамильтониана, второе – трансляционную инвариантность и последнее соотношение описывает инвариантность гамильтониана относительно поворотов в конфигурационном пространстве.

В процессе эволюции реологической среды происходят как конвективные процессы переноса, так и процессы деформирования микроструктуры. Для учета таких движений используем понятия лагранжевых и эйлеровых координат. Эйлеровы координаты $x_k = x_k(\xi_l, t)$ задают положение частицы среды в текущий момент времени. Вектор смещения $u_k(\mathbf{x})$ связывает лагранжеву координату $\xi_k$, которая задает начальное положение частицы, с эйлеровой координатой $x_k$ : $x_k \equiv \xi_k + u_k(\mathbf{x})$. Тензор дисторсии определим равенством

$$b_{ik}(\mathbf{x}) \equiv \nabla_k \xi_i(\mathbf{x}) = \delta_{ik} - \nabla_k u_i(\mathbf{x}). \tag{4}$$

Хорошо известно, что нетривиальные скобки Пуассона для плотности импульса, числа частиц, энтропии и тензора дисторсии имеют вид [12]

$$\{\pi_i(\mathbf{x}), \sigma(\mathbf{x}')\} = -\sigma(\mathbf{x})\nabla_i \delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}'), \qquad \{\pi_i(\mathbf{x}), n(\mathbf{x}')\} = n(\mathbf{x})\nabla_i' \delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}'),$$
$$\{\pi_i(\mathbf{x}), \pi_j(\mathbf{x}')\} = \pi_j(\mathbf{x})\nabla_i' \delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}') - \pi_i(\mathbf{x}')\nabla_j \delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}') \qquad \{b_{ij}(\mathbf{x}), \pi_k(\mathbf{x}')\} = b_{ik}(\mathbf{x}')\nabla_j' \delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}'). \tag{5}$$

Выписанные скобки Пуассона служат основой построения нелинейных уравнений макроскопической динамики классических сплошных сред. Различные особенности динамического описания жидкостей, кристаллов и жидких кристаллов, других сред с внутренней структурой в рамках гамильтонова подхода проявляются в разной зависимости плотности энергии от тензора дисторсии. Термодинамика таких состояний описывается наряду со стандартными параметрами плотностями аддитивных интегралов движения дополнительными физическими величинами $\varphi_\alpha(\mathbf{x}) \equiv \varphi_\alpha(b_{ik}(\mathbf{x}))$, которые задают форму и размер протяженных структурных элементов среды. Эти величины вводятся нами как определенные функции тензора дисторсии, по аналогии с рассмотренной ранее теорией жидких кристаллов [13,10]. Такой набор параметров позволяет учесть как процессы тепло- и массопереноса, так и динамику упругих свойств среды, обусловленную наличием внутренней микроструктуры.

Для параметров, связанных со структурой, в силу соотношения (5) справедлива скобка Пуассона

$$\{\varphi_\alpha(\mathbf{x}), \pi_k(\mathbf{x}')\} = \frac{\partial \varphi_\alpha(\mathbf{x})}{\partial b_{ij}(\mathbf{x})} b_{ik}(\mathbf{x}) \nabla_j' \delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}') \tag{6}$$

Гамильтониан среды $H = \int dx \varepsilon(\sigma(\mathbf{x}), \pi_i(\mathbf{x}), \rho(\mathbf{x}), \varphi_\alpha(\mathbf{x})) = H\{\underline{\zeta}_a, \varphi_\alpha\}$ является функционалом набора макроскопических параметров $\underline{\zeta}_a(\mathbf{x}) = \{\sigma(\mathbf{x}), \pi_i(\mathbf{x}), n(\mathbf{x})\}$, к которым относятся плотность энтропии, плотность импульса, плотность массы $\rho(\mathbf{x}) = mn(\mathbf{x})$, ($m$ - масса частицы) а также структурные параметры среды $\varphi_\alpha(\mathbf{x}) \equiv \varphi_\alpha(b_{ik}(\mathbf{x}))$, которые являются некоторыми определенными функциями тензора дисторсии. В бесструктурных средах гамильтониан системы имеет галилеево-инвариантный вид и является функционалом только величин $\underline{\zeta}_a(\mathbf{x})$. Это значит, что его зависимость от плотности импульса имеет вид $H(\underline{\zeta}) = \int d^3x \pi^2(\mathbf{x}) / 2\rho(\mathbf{x}) + V(\rho(\mathbf{x}), \sigma(\mathbf{x}))$. Наличие какой-либо структуры среды в общем случае приводит к нарушению этого свойства гамильтониана. Поэтому, далее мы не будем предполагать свойства галилеевой инвариантности гамильтониана. Для рассматриваемой среды выпишем дифференциал плотности энергии и введем необходимые термодинамические величины

$$d\varepsilon = \frac{\partial \varepsilon}{\partial \underline{\zeta}_a} d\underline{\zeta}_a + \frac{\partial \varepsilon}{\partial \varphi_\alpha} d\varphi_\alpha \equiv T d\sigma + v_k d\pi_k + \mu dn + h_\alpha d\varphi_\alpha. \tag{7}$$

Здесь $T$ - температура, $v_k$ - макроскопическая скорость, $\mu$ - химический потенциал, связанные с термодинамическими силами $Y_a \equiv Y_0, Y_k, Y_4$ равенствами $T \equiv Y_0^{-1}$, $v_k \equiv -Y_k / Y_0$, $\mu \equiv -Y_4 / Y_0$. Внутреннее поле, связанное с микроструктурными термодинамическими параметрами $\varphi_\alpha$, определяется соотношением $\partial\varepsilon / \partial\varphi_\alpha = h_\alpha$. Соотношение (7) представляет собой второе начало термодинамики конденсированной среды со структурой. Далее удобно это соотношение переписать в терминах плотности энтропии:

$$d\sigma = \frac{1}{T} d\varepsilon - \frac{v_k}{T} d\pi_k - \frac{\mu}{T} dn - \frac{1}{T} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \varphi_\alpha} d\varphi_\alpha \equiv \frac{\partial \sigma}{\partial \zeta_a} d\zeta_a + \frac{\partial \sigma}{\partial \varphi_\alpha} d\varphi_\alpha. \tag{8}$$

Представление плотности потоков в виде скобок Пуассона от плотности аддитивных интегралов движения (2) позволяет найти выражения этих потоков в терминах плотности энергии. В этом случае мы получаем только ту часть плотности потоков $\zeta_{ak}^{(0)}$, которая описывает адиабатические процессы в среде. С этой целью обратимся к выражениям для этих потоков (2) и учтем скобки Пуассона (5),(6). Согласно сказанному, получим выражения для плотностей потоков аддитивных интегралов движения

$$\zeta_{0k}^{(0)} = \frac{\partial \varepsilon}{\partial \pi_k} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \underline{\zeta}_a} \underline{\zeta}_a + \frac{\partial \varepsilon}{\partial \pi_i} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \varphi_\alpha} \frac{\partial \varphi_\alpha}{\partial b_{lk}} b_{li}, \qquad \zeta_{4k}^{(0)} = n \frac{\partial \varepsilon}{\partial \pi_k}, \tag{9}$$

$$\zeta_{ik}^{(0)} = \pi_i \frac{\partial \varepsilon}{\partial \pi_k} + \delta_{ik} \left( -\varepsilon + \underline{\zeta}_a \frac{\partial \varepsilon}{\partial \underline{\zeta}_a} \right) + \frac{\partial \varepsilon}{\partial \varphi_\alpha} \frac{\partial \varphi_\alpha}{\partial b_{lk}} b_{li}.$$

Плотности потоков аддитивных интегралов движения $\varsigma_{ak}$ в (9) содержат слагаемое $\varsigma_{ak}^{(0)}$ в качестве главного

приближения по пространственным градиентам: $\varsigma_{ak} = \varsigma_{ak}^{(0)} + \varsigma_{ak}^{(1)} + \ldots$. Слагаемые $\varsigma_{ak}^{(1)}$ описывают влияние диссипативных процессов и будут рассмотрены в следующем разделе. В соответствии с (9) нетрудно получить уравнения движения для всех параметров сокращенного описания, характеризующих эволюция среды в адиабатическом приближении

$$\dot{\zeta}_a = -\nabla_k \zeta_{ak}^{(0)} \equiv \dot{\zeta}_a^{(1)}, \qquad \dot{\varphi}_\alpha = -\frac{\partial \varphi_\alpha}{\partial b_{ij}} \nabla_j \left( v_k b_{ik} \right) \equiv \dot{\varphi}_\alpha^{(1)}. \tag{10}$$

Следствием этих уравнений является уравнение $\dot{\sigma} \approx \dot{\sigma}^{(1)} = -\nabla_k (\sigma v_k)$, которое отражает динамику плотности энтропии в адиабатическом приближении.

## НОВЫЕ МЕХАНИЗМЫ РЕЛАКСАЦИОННОЙ ДИНАМИКИ

Выпишем теперь уравнения динамики конденсированной среды со структурой с учетом диссипативных процессов

$$\dot{\zeta}_a = \dot{\zeta}_a^{(1)} + \dot{\zeta}_a^{(2)} + \ldots = -\nabla_k \left( \zeta_{ak}^{(0)} + \zeta_{ak}^{(1)} + \ldots \right), \qquad \dot{\varphi}_\alpha = \dot{\varphi}_\alpha^{(1)} + \dot{\varphi}_\alpha^{(2)} + \ldots, \tag{11}$$

здесь слагаемые $\dot{\zeta}_a^{(2)}$, $\dot{\varphi}_\alpha^{(2)}$ описывают вклад релаксации в уравнения динамики

$$\dot{\zeta}_a^{(2)} = -\nabla_k \zeta_{ak}^{(1)}, \qquad \dot{\varphi}_\alpha^{(2)}(\mathbf{x}) = -\frac{\partial \varphi_\alpha(\mathbf{x})}{\partial b_{ij}(\mathbf{x})} \nabla_j \left( v_k^{(1)}(\mathbf{x}) b_{ik}(\mathbf{x}) \right). \tag{12}$$

Следствием уравнений (11),(12) и термодинамического соотношения (8) является равенство

$$\dot{\sigma} = \frac{\partial \sigma}{\partial \zeta_a} \dot{\zeta}_a + \frac{\partial \sigma}{\partial \varphi_\alpha} \dot{\varphi}_\alpha = \dot{\sigma}^{(1)} + \dot{\sigma}^{(2)} + \ldots. \tag{13}$$

Слагаемое

$$\dot{\sigma}^{(2)} = -\nabla_k j_{\sigma k}^{(1)} + I. \tag{14}$$

показывает характер эволюции плотности энтропии физической системы при наличии релаксационных процессов. Здесь введены плотность диссипативного потока $j_{\sigma k}^{(1)}$ и производство энтропии $I$ равенствами

$$j_{\sigma k}^{(1)} = Y_a \zeta_{ak}^{(1)} + \frac{\partial \sigma}{\partial \varphi_\alpha} \frac{\partial \varphi_\alpha}{\partial b_{ij}} v_k^{(1)} b_{ik}, \qquad I = \zeta_{ak}^{(1)} \nabla_k Y_a + v_k^{(1)} D_k.$$

Нетрудно видеть, что вектор $D_k$ имеет вид

$$D_k = b_{ik} \nabla_j \left( \frac{\partial \sigma}{\partial \varphi_\alpha} \frac{\partial \varphi_\alpha}{\partial b_{ij}} \right).$$

Свойство положительности производства энтропии выполняется, если учесть, что диссипативные потоки $\zeta_{ak}^{(1)}$ и $v_k^{(1)}$ являются линейными функциями $\nabla_k Y_a$ и $D_k$, так чтобы производство энтропии приобрело вид квадратичной формы:

$$\zeta_{ak}^{(1)} = \nabla_l Y_b I_{ak,bl} + D_l I_{ak,l}, \qquad v_k^{(1)} = \nabla_l Y_b I_{k,bl} + D_l I_{k,l}, \tag{15}$$

здесь $I_{ak,bl}$, $I_{ak,l}$ и $I_{k,l}$ - обобщенные кинетические коэффициенты. Последние равенства приводят в виду производства энтропии

$$I = \left( \nabla_l Y_b I_{ak,bl} + D_k I_{ak,l} \right) \nabla_k Y_a + \left( \nabla_l Y_b I_{k,bl} + D_l I_{k,l} \right) D_k.$$

Для положительной определенности этой квадратичной формы требуем выполнения принципа Онсагера:

$$I_{ak,bl} = I_{bl,ak}, \qquad I_{ak,l} = I_{l,ak}, \qquad I_{k,l} = I_{l,k}.$$

Кинетические коэффициенты $I_{ak,bl}$ характеризуют процессы диффузии, самодиффузии, термодиффузии, теплопроводности и вязкости. Они описывают релаксацию среды за счет физических процессов, не связанных со структурой, а обусловленную законами сохранения. Кинетические коэффициенты $I_{ak,l}$ описывают влияние структуры на динамику термо- и массопереноса. Неоднородности термодинамических сил посредством кинетических коэффициентов $I_{ak,l}$ влияют на эволюцию структуры. Наконец, кинетический коэффициент $I_{k,l}$ описывает влияние структуры на саму себя. В общем случае, когда состояние среды неоднородное и не изотропное кинетические коэффициенты имеют тензорный характер. Система уравнений (11)-(15) описывает

нелинейную конвективную динамику процессов тепло- и массопереноса с взаимным влиянием внутренней структуры. Если внутренняя структура отсутствует, то кинетические коэффициенты $I_{ak,l}=0$ , $I_{k,l}=0$ .

**СВЯЗЬ С ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКОЙ ТЕОРИЕЙ СУШКИ РЕОЛОГИЧЕСКИХ СРЕД**

Хорошо известно, что процессы сушки достаточно медленные [7] и оценки дают следующий порядок числа Рейнольдса $Re<Re_{кр}$ Поэтому далее мы пренебрегаем конвекционным макроскопическим переносом $\left(\nabla_k Y_i=0, Y_k=0\right)$ в уравнениях (11)-(15). Кроме того, используем принцип Кюри, согласно которому потоки могут быть связаны, если они имеют одинаковую тензорную размерность. В это случае $I_{ak,bl}=I_{b,a}\delta_{ik}$ , $I_{ak,l}=I_a\delta_{kl}$ , $I_{k,l}=\underline{I}\delta_{kl}$ . В результате получена более простая система динамических релаксационных уравнений. Далее полагаем, что обобщенные кинетические коэффициенты постоянные: $I_{ab}-const$ , $I_a-const$ , $\underline{I}-const$ . В результате получим систему релаксационных уравнений

$$\dot{\zeta}_\alpha=-\nabla_k\left(\zeta_{\alpha k}^{(1)}\right)=-I_{ab}\Delta Y_b-I_a\nabla_k D_k,\,, \qquad \dot{\varphi}_\alpha^{(2)}=-\frac{\partial\varphi_\alpha}{\partial b_{ij}}\nabla_j\left(b_{ik}\left(I_a\nabla_k Y_a+\underline{I}D_k\right)\right). \tag{16}$$

Далее мы рассмотрим частный случай, когда внутреннее состояние микроструктуры описывается одним скалярным параметром $l(\mathbf{x})$, который характеризует размер дефекта в среде. Можно показать, что единственная нетривиальная скобка Пуассона этой величины с плотностью импульса имеет вид

$$\left\{\pi_i(\mathbf{x}),l(\mathbf{x}')\right\}=\frac{1}{3}l(\mathbf{x})\nabla_i\delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}')+\frac{4}{3}\delta(\mathbf{x}-\mathbf{x}')\nabla_i l(\mathbf{x})\,. \tag{17}$$

Уравнение динамики в диссипативном приближении для размера структурного дефекта, а также плотностей энергии и массы среды приобретают вид

$$\dot{\zeta}_\alpha=-I_{ab}\Delta Y_b-I_a\nabla_k D_k\,, \qquad \dot{l}=-\left(I_a\nabla_k Y_a+\underline{I}D_k\right)\nabla_k l+\frac{1}{3}l\left(I_a\Delta Y_a+\underline{I}\nabla_k D_k\right), \tag{18}$$

где

$$D_k=-\frac{1}{3}\nabla_k\left(\frac{\partial\sigma}{\partial l}l\right)-\frac{\partial\sigma}{\partial l}\nabla_k l\,. \tag{19}$$

Давление связано с плотностью энергии соотношением

$$P\equiv-\varepsilon+\underline{\zeta}_a\frac{\partial\varepsilon}{\partial\underline{\zeta}_a}-\frac{1}{3}l\frac{\partial\varepsilon}{\partial l}\,. \tag{20}$$

Для сравнения уравнений (18) с уравнениями работы [7], линеаризуем уравнения (18) около состояния равновесия. При этом необходимо учесть, что равновесное значение размера дефекта определяется соотношением $\partial\varepsilon/\partial l\big|_{l_0}=0$ . В силу определения (20) вариация давления и размера дефекта связаны в линейном приближении соотношением $\delta P=-l_0\partial^2\varepsilon/\partial l^2\big|_0\delta l/3$. В результате получим линеаризованные уравнения для отклонений величин $\delta\zeta_a$ и $\delta P$ от их равновесных значений

$$\delta\dot{\zeta}_a=-I_{ab}\Delta\delta Y_b-I_a\Delta\delta P, \qquad \delta\dot{P}=-\frac{l_0^2}{9}I_a\frac{\partial^2\varepsilon}{\partial l^2}\bigg|_0\Delta\delta Y_a-\frac{l_0^2}{9}\underline{I}\frac{\partial^2\varepsilon}{\partial l^2}\bigg|_0\Delta\delta P. \tag{21}$$

Эти уравнения совпадают с уравнениями, которые описывают процесс сушки материалов полученными в работе [7]. Первое уравнение в (21) отражает законы сохранения энергии и массы в дифференциальной форме. Второе уравнение в (21), феноменологически введенное в [7], позволяет учесть влияние еще одного управляющего параметра – давления на динамические процессы в среде. Наша интерпретация происхождения такого типа уравнения обусловлена наличием внутренней структуры в среде. Видим, что часть кинетических коэффициентов, связана с наличием дополнительных термодинамических параметров, учитывающих форму и размер протяженной структуры. Из вида уравнений следует, что явления теплопроводности, диффузии и конвекции могут происходить не только в силу неоднородностей плотностей аддитивных интегралов движения, но и благодаря неоднородностям структуры дефектов среды. Совпадение с работой [7] оказалось возможным, если внутреннюю структуру материала можно описать достаточно просто с помощью одного скалярного параметра. В ситуации, когда внутренняя структура более сложная, и она характеризуется несколькими величинами, необходимо использовать уравнения (11)-(15).

Система уравнений (18)-(21) описывает взаимное влияние термо- и массопереноса на изменение пространственной структуры дефектов. Найденный нами вид диссипативных потоков свидетельствует о существовании дополнительных кинетических коэффициентов, описывающих новые механизмы релаксации в среде, связанные с наличием внутренней структуры.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Хорошо известно, что при сушке материалов существенными являются три параметра управляющие этим процессом: температура, плотность массы диффундирующего вещества и давление. Последняя физическая величина особенно важна при использовании технологии вакуумной сушки. Появление второго уравнения в работе [7] было вызвано стремлением согласовать технологические возможности вакуумной сушки с хорошо известными представлениями термодинамики и механики сплошных сред. Вид этого уравнения полностью совпадает с видом первого уравнения в (21), которое отражает наличие двух законов сохранения. Давление не связано с каким-либо самостоятельным законом сохранения, что на первый взгляд противоречит стандартным представлениям механики сплошных сред. По нашему мнению появление такого независимого уравнения обусловлено исключительно наличием внутренней структуры вещества и ее влиянием на релаксационные процессы в среде. Система уравнений (21) представляет собой уравнения параболического типа математической физики, решения которых хорошо известны.

Аналитические решения уравнений, описывающих режимы работы сушильной установки, связывали с разработанной экспериментальной моделью термовакуумной сушки. На рис. 1. приведены данные убыли массы высушиваемого гидроксида циркония как функции времени. Начальное состояние гидроксида циркония является аморфным веществом и обладает различного рода дефектами структурного состояния, плотность и разновидность которых зависит от величины внешнего энергетического воздействия и внутреннего состояния среды. Термовакуумная обработка гидроксида циркония способствовала образованию и развитию дефектов, формированию новой объемной микро- и макроструктуры. В процессе термовакуумного воздействия на гидроксид циркония происходило накопление дефектов, приводящих как к изменению их геометрических характеристик в структуре, так и удалению влаге из вещества. При этом в процессе удаления влаги в исследуемом веществе происходит потеря однородности состояния аморфного вещества по объему и образование диоксида циркония.

Для различных продуктов сушки экспериментальные данные количества убыли массы оценивались по формуле $M_{\exp}(t) \equiv \int_0^t d\tau \int_V d^3x \dot{\rho}(\mathbf{x},\tau)$, где $V$ - объем вышедшей влаги, могут иметь значительный разброс, обусловленный внутренней структурой продукта, характером его подготовки к сушке, начальным составом влаги, уровнем сухого остатка. Эти особенности в значительной степени учитываются уровнем интенсивности убывания влаги из продукта. Для оценки данных факторов и сопоставления их с предложенной математической моделью выбрана в качестве основной точки, где наблюдается максимальная скорость удаления влаги из гидроксида циркония. Этим условиям отвечает точка максимума скорости сушильного процесса (см. рис.1) и касательная к кривой $M_{\exp}(t)$, проведенная в точке максимального паровыделения (см. рис. 2), где угол определяется касательной и осью абсцисс.

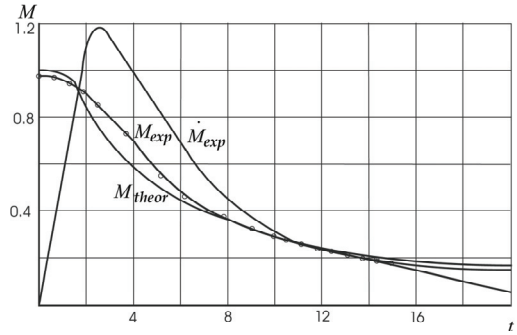



Рис. 1. Убывание массы гидроксида циркония $M_{\exp}(t)$ и $M_{theor}(t)$ и скорость сушильного процесса $\dot{M}_{\exp}(t)$

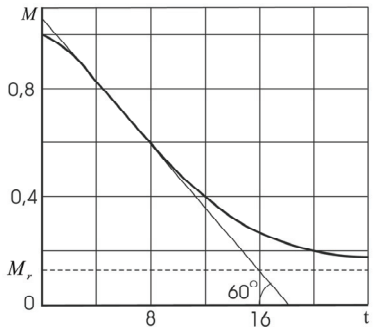



Рис. 2. Определение точки максимального паровыделения. $M_r$ - масса сухого вещества

Результаты исследований могут найти свое применение при описании нелинейной пространственно-временной самоорганизации в гетерогенных средах, а также для более адекватного описания процесса сушки материалов, за счет использования нелинейных эффектов.

## ВЫВОДЫ

В работе найдены диссипативные потоки и показана возможность существования дополнительных кинетических коэффициентов, которые описывают новые механизмы релаксации в среде, связанные с наличием внутренней структуры протяженных дефектов. Предложен механизм влияния формы и размера структуры дефектов на процессы массопереноса в конденсированной среде. В результате полученная нами система уравнений описывает взаимное влияние термо- и массопереноса на изменение пространственной структуры дефектов. Найденный вид реактивных и диссипативных потоков свидетельствует о наличии дополнительных кинетических коэффициентов, описывающих новые механизмы релаксации в среде, связанные

с наличием внутренней структуры. Предложенные уравнения учитывают нелинейное влияние внутренней структуры на релаксационные динамические процессы и могут быть использованы при построении различных упрощенных моделей, описывающих вакуумную сушку реологических конденсированных сред.

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Beris A.N., Edwards B.J. Thermodynamics of flowing systems with internal microstructure. - Oxford University Press, 1994. - 704 p.
2. Chaikin P.M., Lubensky T.C. Principles of condensed matter physics. - Cambridge University Press, 1995. - 699 p.
3. Slezov V.V., Kutovoy V.A., Nikolaychuk L.I. K teorii termovakuumnoy sushki // VANT. – 2003. - № 5. - S. 7-13.
4. Tarasevich Yu.Yu. Mekhanizmy i modeli degidratatsionnoy samoorganizatsii biologicheskikh zhidkostey // UFN – 2004. T. 174, № 7. - S. 779-790.
5. Svirezhev Yu.M. Nelineynye volny, dissipativnye struktury i katastrofy v ekologii. - M.: Nauka, 1987. - 368 s.
6. Daller J.S., Scriven L.E. Theory of Structured Continua. I. General Consideration of Angular Momentum and Polarization // Phys.Rev. A. – 1963. - Vol. 275. - P. 504-527.
7. Lykov A.V. Teplo i massoobmen v protsessakh sushki. - M.: Gosenergoizdat, 1956. - 464 s.
8. Nemtsov V.B. Neravnovesnaya statisticheskaya mekhanika sistem s orientatsionnym poryadkom. – Minsk: Tekhnologiya, 1997. - 277 s.
9. Tsimermanis L.-Kh.B. Sorbtsiya, strukturoobrazovanie, massoperenos (Termodinamika vlazhnogo tela). - M.: Aleks, 2006. - 232 s.
10. Kovalevskiy M.Yu., Matskevich V.T., Logvinova L.V. Issledovanie vliyaniya deformatsii molekul na dinamiku i spektry kollektivnykh vozbuzhdeniy v nematicheskikh zhidkikh kristallakh // EChAYa. - 2009. - T. 40. - Vyp. 3. - S. 704-753.
11. Akhiezer A.I., Peletminskiy S.V. Metody statisticheskoy fiziki. - M.: Nauka, 1977. - 377 s.
12. Dzyaloshinsky I.E., Volovick G.E. Poisson brackets in condensed matter physics // Ann. Phys. - 1980. - Vol. 125. - P. 67-97.
13. Isaev A.A., Kovalevskiy M.Yu., Peletminskiy S.V. Gamil'tonov podkhod v teorii kondensirovannykh sred so spontanno narushennoy simmetriey // EChAYa. - 1996. - T. 27. - Vyp. 2. - S. 431-492.

*УДК 533.9*

# ЗБІЛЬШЕННЯ ЕНЕРГІЇ ЕЛЕКТРОНА У СТОХАСТИЧНО ДАНОМУ ПОЛІ ТА ГАЗОВИЙ РОЗРЯД

**В.М. Остроушко**
*Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України*
*Харків, 61108, вул. Академічна, 1*
*E-mail: ostroushko-v@kipt.kharkov.ua*
Received 18 July 2012, accepted 23 November 2012

З'ясовуються можливості застосування результатів робіт з беззіткненного нагрівання плазми у стохастичному полі до надвисокочастотного газового розряду низького тиску. Розглянуто рух електрона у стохастично даному полі та показано, що збільшення його енергії визначається наявністю потужності на резонансних частотах, незалежно від наявності чи відсутності стрибків поля, а стохастичність є тільки способом переведення потужності до резонансних частот. Наведено приклади таких стаціонарних стохастичних процесів зі стрибками поля та без стрибків, у яких енергія електрона з часом поступово збільшується, та таких, у яких енергія електрона залишається обмеженою. Проведене порівняння енергії, яку електрон може здобути у обмеженому проміжку під дією поля за наявності та за відсутності зіткнень, та вказано, що в обох випадках хаотичність не підвищує ефективності процесу здобуття електроном енергії.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА**: надвисокочастотний розряд, зіткненне нагрівання, стохастична кореляція, спектр потужності, фаза коливань

**УВЕЛИЧЕНИЕ ЭНЕРГИИ ЭЛЕКТРОНА В СТОХАСТИЧЕСКИ ДАНОМ ПОЛЕ И ГАЗОВЫЙ РАЗРЯД**

**В.Н. Остроушко**
*ННЦ "Харьковский физико-технический институт" НАН Украины*
*Харьков, 61108, ул. Академическая, 1*

Выясняются возможности применения результатов работ по бесстолкновительному нагреву плазмы в стохастичном поле к сверхвысокочастотному газовому разряду низкого давления. Рассмотрено движение электрона в стохастически заданном поле и показано, что увеличение его энергии определяется наличием мощности на резонансных частотах, независимо от наличия или отсутствия скачков поля, а стохастичность является только способом перевода мощности к резонансным частотам. Приведены примеры таких стационарных стохастических процессов со скачками поля и без скачков, в которых энергия электрона со временем постепенно увеличивается, и таких, в которых она остается ограниченной. Проведено сравнение энергии, которую электрон может приобрести в ограниченном промежутке под действием поля при наличии и при отсутствии столкновений, и указано, что в обоих случаях хаотичность не повышает эффективности процесса приобретения электроном энергии.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** сверхвысокочастотный разряд, столкновительный нагрев, стохастическая корреляция, спектр мощности, фаза колебаний

**ELECTRON ENERGY INCREASE IN STOCHASTICALLY GIVEN FIELD AND GAS DISCHARGE**

**V.M. Ostroushko**
*NSC "Kharkiv Institute of Physics and Technology" NASU*
*Kharkiv, 61108, st. Akamemicheskaya 1, Ukraine*

Possibilities of application of results of the works for non-collision plasma heating in stochastic field to high frequency low-pressure gas discharge are clarified. An electron motion in the stochastically given field is considered, and it is shown that electrons energy increase is determined with presence of power at resonant frequencies, regardless of presence or absence of field jumps, and stochasticity is only the mean to transfer power to resonant frequencies. There are presented the examples of such stationary stochastic processes with and without of field jumps, in which electron energy gradually increases with time, and the examples of such ones, in which electron energy remains limited. It is compared the energy, which electron can obtain in the bounded gap under field action in presence and in absence of collisions, and it is pointed out that in both cases randomness does not increase the effectiveness of the process of electron energy gain.
**KEY WORDS:** high-frequency discharge, collisional heating, stochastic correlation, power spectrum, oscillation phase

Останнім часом було виконано певні дослідження надвисокочастотного газового розряду низького тиску у полі, відмінному від синусоїдального [1–6]. Виявлене зниження пробивної потужності у такому полі [1, 4–6]. У числових розрахунках виявлений ефект кращого проходження стохастичного випромінювання через плазмовий шар [1,2]. У експериментах з практично стохастичним випромінюванням згаданий ефект підтверджено [1,3]. При поясненні виявлених ефектів значну увагу приділено стрибкам фази. Як теоретична основа використовується класична робота [7], у якій розглянуто дію стохастичного поля на плазму та отримано певні співвідношення для зміни характеристик плазми з часом. Ідеї роботи [7] були розвинуті у роботі [8] для нагрівання іоносфери стохастичним випромінюванням.

З іншого боку, здавалося б, для надання електрону у проміжку якомога більшої енергії, треба, застосовуючи максимально можливу напруженість поля, на першій половині відстані до електроду прискорювати електрон, а на другій – здійснювати гальмування, яке після зупинки електрона переходить у його

© Ostroushko V.M., 2012

прискорення у протилежному напрямку. Якщо кусково-постійну залежність поля від часу замінити синусоїдальною, з тим саме значенням максимальної напруженості поля, то максимальна енергія електрона у розрядному проміжку зменшується лише у 2 рази (а отримати для застосування синусоїдальну залежність значно простіше). Якщо ж використовувати таку залежність поля від часу, при якій прискорення або гальмування у відповідних половинах проміжку свідомо чи випадково послаблюються або навіть змінюють одне одного, то, здавалося б, максимальне значення енергії електрона у проміжку тільки зменшується (або електрон втрачається для розряду, виходячи на межі). Однак, результати робіт [7,8], у яких було виявлене збільшення енергії електронів у стохастичному полі, на перший погляд, можуть свідчити про можливість отримання якихось переваг від застосування немонохроматичного поля, зокрема, для газового розряду.

Використання результатів роботи [7] у поясненні експериментів [1,3–6] пов'язане із застосуванням у експериментах стохастичної залежності поля від часу, отриманої із залученням позитивного зворотного зв'язку між виходом генератора та входом. У роботі [7] та залежність розглядається як дана (формально, дана тільки кореляційна функція). Але коли мова йде про цілеспрямовану побудову приладу, то природно виникає питання про те, яка залежність від часу є оптимальною по відношенню до ефективної реалізації певних процесів. Тож доцільно з'ясувати, які саме риси використаної у [7] залежності поля від часу ведуть до збільшення енергії електронів при русі без зіткнень, і чи не можна, усунувши хаотичність, посилити ті риси свідомо. А для виявлення тих рис бажано відтворити хід виведення результатів робіт [7,8], і тоді стає зрозумілим, що там фактично було отримано. А саме, фактично у роботах [7,8] було доведено, що збільшення енергії електронів відбувається завдяки наявності потужності на резонансних частотах (для одного електрона за відсутності сталого магнітного поля – на нульовій частоті), а у стохастичному полі з тією кореляційною функцією, яка у [7,8] використана, потужність є ненульовою на усіх частотах, що і забезпечує збільшення енергії електронів. І тому заміна гармонійної залежності поля від часу якоюсь іншою не може якось особливо підвищити ефективність процесу здобуття електроном енергії. Беззіткненне нагрівання, з яким пов'язують результати експериментів [1,4–6], фактично є простим прискоренням, хіба що у полі зі складною залежністю від часу. І у двох наступних розділах даної роботи обґрунтовується, що для збільшення енергії електронів при русі без зіткнень наявність потужності на резонансних частотах необхідна та достатня, а стрибки поля не є ані необхідними, ані достатніми. Тоді виникає питання про те, на якому процесі насправді ґрунтується запалювання розряду у експериментах [1,4–6]. Таким може бути зіткненне нагрівання. І у останньому розділі показані переваги наявності зіткнень, для збільшення енергії електронів у проміжку.

Отже, мета даної роботи – показати, що беззіткненне нагрівання визначається наявністю потужності на резонансних частотах, і наявність стрибків поля для такого процесу не обов'язкова, а запалювання розряду у експериментах [1,4–6], імовірно, визначається зіткненним нагріванням. Результати даної роботи стосуються надвисокочастотного розряду, і у першу чергу – того напрямку його розвитку, якому присвячені роботи [1,4–6].

## СПЕКТРАЛЬНА ГУСТИНА ПОТУЖНОСТІ НА РЕЗОНАНСНИХ ЧАСТОТАХ ТА УСЕРЕДНЕНИЙ ТЕМП ЗМІНИ ХАРАКТЕРИСТИК СИСТЕМИ

У надвисокочастотному розряді, досліджуваному у експериментах [1,4–6], на електрони діє поле хвилі у коаксіальному хвилеводі, приєднаному до виходу генератора. Використовуються циліндри з радіусами 0,6 см та 2,25 см, а довжина хвилі – 60 см, і у межах відстаней уздовж осі порядку відстані між циліндрами процеси здобуття електронами енергії від поля відбуваються практично синхронно. Від звичайного надвисокочастотного розряду той розряд відрізняється, практично, лише несинусоїдальною залежністю поля від часу. Якщо звернутися до теоретичних робіт [7,8], то у [7] поле хвиль у плазмі (циркулярно поляризованих уздовж сталого магнітного поля та поздовжніх хвиль у ізотропній плазмі) змінює функцію розподілу електронів, а саме загасає, а у [8] поле електромагнітної хвилі діє на пробний електрон. У обох випадках у лінійному наближенні відшукане збурення функції розподілу або швидкість електрона у полі хвилі, а темп повільної зміни відповідних характеристик отримано з використанням усереднення за реалізаціями стохастичного процесу. У роботі [7] для функції розподілу електронів за швидкостями отримане рівняння, яке дозволяє описати зміну функції розподілу як дифузію у просторі швидкостей, причому у [7] встановлено, що ту зміну можна описати через зміну одного параметру – температури. Для з'ясування шляху надходження потужності на збільшення енергії електрона досить розглянути рух одного пробного електрона у відповідним чином змінному полі, як у роботі [8], доповнивши модель сталим магнітним полем, наявним у одному з випадків, розглянутих у роботі [7], і залишаючи поза розглядом характеристики одночасної зміни енергії різних електронів, дані функцією розподілу. Для уточнення фізичного тлумачення результатів, отриманих у [7,8], доцільно відтворити хід їхнього виведення у даній моделі. Тож, розглянемо рух електрона, який перебуває у сталому магнітному полі, спрямованому уздовж осі $z$, та у електричному полі хвиль, спрямованому уздовж осі $x$. Магнітне поле характеризується циклотронною частотою $\omega_H$ (формально, нульовою, якщо поле відсутнє). Позначимо через $g(t)$ обмежену дійсну функцію, відповідну частині прискорення уздовж осі $x$, обумовленій тільки змінним електричним полем (без урахування доцентрового прискорення від магнітного поля). Нехай функція $g_T(t)$ визначена рівностями $g_T(t) = g(t)$ при $t \in (-T/2, T/2)$ та $g_T(t) = 0$ при $t \notin (-T/2, T/2)$, а

тильда вказує на перетвір Фур'є,

$$\tilde{g}_T(\omega) = (2\pi)^{-1}\int dt\ \exp(i\omega t) g_T(t)$$

(тут і далі межі інтегрування за $(-\infty,+\infty)$ не написані). Нехай функція $v_T(t)$ задовольняє початковій умові $v_T(-\infty)=0$ та рівнянню

$$(d/dt)v_T(t) + i\omega_H v_T(t) = g_T(t), \qquad (1)$$

відповідаючи лінійній комбінації $v_{xT}(t)+iv_{yT}(t)$, проекцій швидкості на осі $x$ та $y$. Вводимо, також, величину $P_T = T^{-1}\int dt\ g_T(t)\,\mathrm{Re}\, v_T(t)$, яку можна пов'язати з усередненим темпом зміни енергії електрона під дією імпульсу $g_T(t)$ з тривалістю $T$. Розв'язок рівняння (1) має вигляд

$$v_T(t) = \int_{-\infty}^{t} dt'\ \exp[i\omega_H(t'-t)] g_T(t'). \qquad (2)$$

Підставляючи (2) у визначення $P_T$, отримуємо

$$2TP_T = \int dt \frac{d}{dt}\left\{\left[\int_{-\infty}^{t} dt'\cos(\omega_H t')g_T(t')\right]^2 + \left[\int_{-\infty}^{t} dt'\sin(\omega_H t')g_T(t')\right]^2\right\} = \left|\int dt\ \exp(i\omega_H t) g_T(t)\right|^2 = 4\pi^2\left|\tilde{g}_T(\omega_H)\right|^2. \qquad (3)$$

Якщо функція $g(t)$ відповідає стаціонарному ергодичному стохастичному процесу, то функції $g(t+t_0)$ з різними $t_0$ можна розглядати як реалізації процесу. Позначаючи кутовими дужками усереднення за $t_0$ (хоча і не вказуючи $t_0$ у аргументах функцій), можна ввести кореляційну функцію $B(t) = \langle g(t'+t)g(t')\rangle$ та величини $P = \lim_{\{T\to\infty\}}\langle P_T\rangle$ та $\tilde{F}(\omega) = \lim_{\{T\to\infty\}}\left\langle T^{-1}\left|\tilde{g}_T(\omega)\right|^2\right\rangle$, пов'язані з усередненим темпом зміни енергії електрона та усередненою спектральною густиною потужності. Використання рівності $\tilde{B}(\omega) = 2\pi\tilde{F}(\omega)$ [9, с. 102] та застосування усереднення та граничного переходу до (3) дає рівність

$$P = 2\pi^2\tilde{F}(\omega_H), \qquad (4)$$

яка показує, що усереднений темп зміни відповідних характеристик визначається спектральною густиною потужності на резонансній частоті.

Саме такому результату відповідають рівності (8,10,12,21,22) роботи [7], для усередненого темпу зміни функції розподілу електронів (8,12,21) та амплітуд хвиль (10,22), у ізотропній плазмі (21,22) та у плазмі у магнітному полі (8,10,12), причому (12) стосується повільних електронів. У правих частинах тих рівностей є добутки вигляду $|\bar{E}|^2\tilde{V}$, де $\bar{E}$ – амплітуда хвилі, множник при $\exp(-i\omega_k t)$, $\omega_k$ – частота хвилі з хвилевим числом $k$, причому $|\bar{E}|$ змінюється повільно, а $\tilde{V}$ – перетвір Фур'є кореляційного коефіцієнту функції, що залишилася від напруженості поля після винесення множника $|\bar{E}|\exp(-i\omega_k t)$. Внаслідок його винесення, аргументом функції $\tilde{V}$ є не частота, резонансна для електронів даної швидкості, а різниця між нею та $\omega_k$. А сам добуток $|\bar{E}|^2\tilde{V}$ відповідає перетвору Фур'є кореляційної функції поля, а отже – і спектральній густині потужності. Рівності (8,21,10,22) роботи [7] можна записати, відповідно, так:

$$\partial f_{0H}/\partial t = \pi(2m)^{-2}\sum_k\left\{\left[v_\perp^{-1} + (\partial/\partial v_\perp)\right]\left[\left(1-kv_z\omega_k^{-1}\right)S_k^{\pm}\right] + (\partial/\partial v_z)\left(kv_\perp\omega_k^{-1}S_k^{\pm}\right)\right\}, \qquad \partial f_0/\partial t = \pi m^{-2}\sum_{\vec{k}}\vec{k}\left(\partial/\partial\vec{v}\right)S_{\vec{k}},$$

$$\partial\left|\bar{E}_k^{\pm}\right|^2/\partial t = 2\pi^2 m^{-1}\omega_k^2\left(k^2c^2+\omega_k^2\right)^{-1}\int d\vec{v}v_\perp S_k^{\pm}, \qquad \partial\left|\bar{E}_{\vec{k}}\right|^2/\partial t = 8\pi^2 m^{-1}\int d\vec{v}\left(\vec{k}\vec{v}\right)S_{\vec{k}}.$$

Тут $S_k^{\pm} = q^2\left|\bar{E}_k^{\pm}\right|^2\tilde{V}\left(kv_z-\omega_k\mp\omega_H\right)\left[\left(1-kv_z\omega_k^{-1}\right)(\partial/\partial v_\perp)+kv_\perp\omega_k^{-1}(\partial/\partial v_z)\right]f_{0H}$, $S_{\vec{k}} = q^2k^{-2}\left|\bar{E}_{\vec{k}}\right|^2\tilde{V}\left(\vec{k}\vec{v}-\omega_{\vec{k}}\right)\vec{k}\left(\partial/\partial\vec{v}\right)f_0$, $v_z$ та $v_\perp$ – паралельні та перпендикулярні магнітному полю компоненти швидкості електронів, $q$ та $m$ – заряд та маса електрона, знаки $\pm$ вказують на спосіб циркулярної поляризації. Також і у роботі [8] у правій частині рівності для усередненого темпу зміни квадрату швидкості присутній перетвір Фур'є кореляційної функції напруженості поля для резонансної (там, нульової) частоти.

Тож, з урахуванням (4), співвідношення, отримані у [7,8], показують, що усереднений темп зміни відповідних характеристик визначається спектральною густиною потужності на резонансних частотах. І якщо коефіцієнт кореляції (визначений як відношення кореляційної функції до усередненого квадрату амплітуди) узяти таким, як у роботах [7, 8], а саме,

$$V(t) = \exp(-|t/\tau|), \qquad \tilde{V}(\omega) = \left[\pi\left(1+\omega^2\tau^2\right)\right]^{-1}\tau, \qquad (5)$$

то на будь-якій частоті (зокрема, і на резонансних) є ненульова потужність, і саме це є причиною збільшення енергії електронів.

## ДЕЯКІ СТОХАСТИЧНІ ПРОЦЕСИ З ВІДПОВІДНИМИ КОЕФІЦІЄНТАМИ КОРЕЛЯЦІЇ ТА СТРИБКИ ПОЛЯ

Варто нагадати, що коефіцієнт кореляції (5) стосується множника при $|\bar{E}|\exp(-i\omega_k t)$, а не усього добутку. Коефіцієнт кореляції (5) мають різні процеси, і параметр $\tau$ у них може мати різний фізичний сенс. Один з таких процесів – процес Пуассона з середньою частотою $\tau^{-1}$, утворений кусково-постійними значеннями, у якому імовірність відсутності змін протягом часу $t$ після попередньої зміни дорівнює $\exp(-t/\tau)$, а імовірності отримати після зміни протилежні значення однакові. Зокрема, у випадку кусково-постійних значень $\exp(i\phi)$ з $\phi \in (0, 2\pi)$ процес асоціюється зі стрибками фази. Як другий приклад процесу з коефіцієнтом кореляції (5) можна узяти процес [10, с. 94], кожна реалізація якого дана сумою імпульсів $\pm f_1(t-t_n)$, де знаки $(\pm)$ випадкові, незалежні та рівноімовірні, моменти часу $t_n$ відповідають процесу Пуассона з середньою частотою $\nu$ (послідовні, $t_{n+1} > t_n$, випадкові та незалежні), а функція $f_1(t)$ визначена рівностями $f_1(t) = \exp(-t/\tau)$ при $t > 0$ та $f_1(t) = 0$ при $t < 0$.

У зв'язку з результатами робіт [1,2], тут варто зауважити, що при проходженні через будь-які лінійні середовища сигнали з однаковою частотною залежністю модуля перетвору Фур'є (хоча б і з різними фазово-частотними характеристиками) дають однакові значення пропущеної та відбитої енергії (у зв'язку з можливістю застосувати перетворення Фур'є та незалежністю поширення різних гармонік). І хоча функція $\tilde{F}(\omega)$ (спектральна густина потужності) стає функцією з обмеженою зміною тільки з допомогою усереднення за реалізаціями, без якого функція $T^{-1}\left|\tilde{g}_T(\omega)\right|^2$ при збільшенні $T$ залишається суттєво змінною на усе менших інтервалах частоти, усе-таки, якщо для того лінійного середовища виконується природне припущення про обмеженість зміни функцій, які описують залежності модулів коефіцієнтів проходження та відбиття від частоти, то для будь-якого інтервалу частоти значення пропущеної та відбитої енергії при збільшенні $T$ наближаються до значень, відповідних сигналу з усередненою спектральною густиною потужності $\tilde{F}(\omega)$, незалежно від фазово-частотних характеристик. Якщо ж середовище нелінійне, то значення пропущеної та відбитої енергії залежать не тільки від фазово-частотної характеристики сигналу, а й від його амплітуди.

Повертаючись до відповідного імпульсного стохастичного процесу з функцією $f_1(t)$ та замінюючи її на функцію $f_2(t)$, визначену рівністю $f_2(t) = \exp(-\tau^{-2}t^2)$, для коефіцієнта кореляції отримуємо рівності

$$V(t) = \exp\left(-2^{-1}\tau^{-2}t^2\right), \qquad \tilde{V}(\omega) = (2\pi)^{1/2}\,\tau\,\exp\left(-2^{-1}\omega^2\tau^2\right),$$

які теж відповідають поступовому систематичному збільшенню енергії електронів, хоча стрибків у функції $f_2(t)$ немає.

Але якщо у визначенні відповідного стохастичного процесу з імпульсами $\pm f(t-t_n)$ змінити один пункт і зробити знаки $(\pm)$ почерговими, тобто визначити реалізації як суми доданків $(-1)^n f(t-t_n)$, то, позначаючи $b(t) = \int dt' f(t') f(t'+t)$, для кореляційної функції можна отримати рівності

$$B(t) = \nu\left[b(t) - \nu\int d\xi\,\exp(-2\,\nu\,|\xi - t|)\,b(\xi)\right], \qquad \tilde{B}(\omega) = (\omega^2 + 4\nu^2)^{-1}\,\omega^2\,\nu\,\tilde{b}(\omega)\ .$$

Викладемо коротко хід виведення. При обчисленні кореляційної функції можна інтегрувати за часом добуток одного доданку, $(-1)^n f(t'-t_n)$, з усією сумою (з $t'+t$ замість $t'$ у аргументі) та усереднювати за номером обраного доданку, що дає загальний множник $\nu$ (середню частоту імпульсів). Враховуємо, що для розглянутого процесу Пуассона, при $n \geq 0$, $\xi > 0$, різниця $t_{\pm(n+1)} - t_0$ (інтервал часу між імпульсами) належить малому інтервалу $(\pm\xi, \pm\xi + d\xi)$ з імовірністю $d\xi\ \nu\ (n!)^{-1}\ (\nu\xi)^n \exp(-\nu\xi)$. Множимо імовірність на $(-1)^n$ та беремо суми за $n$, за попередніми та за наступними імпульсами, отримуючи експоненту з множником 2 у показнику як добуток експоненти, написаної у імовірності явно, з експонентою, одержаною при підсумовуванні. Нарешті, виконуємо інтегрування за часом $\xi$ між імпульсами та додаємо внесок добутку обраного імпульсу із самим собою. Отримана кореляційна функція, у зв'язку з виконанням рівності $\tilde{B}(0) = 0$, відповідає відсутності поступового систематичного збільшення енергії електронів, у даному разі – через компенсацію внеску почергових імпульсів.

За відсутності сталого магнітного поля здобуття енергії електроном визначається величиною перетвору Фур'є поля при нульовій частоті, яка відіграє роль резонансної. З визначення усередненої спектральної густини потужності та її зв'язку з перетвором Фур'є кореляційної функції випливає, що величина $\tilde{B}(0)$ може бути обмеженою та ненульовою тільки у разі, коли при збільшенні величини $T$ інтервалу часу, у якому $g_T(t) \neq 0$,

величина інтегралу $\int dt\, g_T(t)$ збільшується, у середньому, як $T^{1/2}$. Згаданий інтеграл пропорційний зміні швидкості електрона у полі протягом часу $T$, і припущення про те, що $\tilde{B}(0) \neq 0$, виявляється пов'язаним зі збільшенням енергії електрона лінійним за часом. А стала складова поля (величина якого пропорційна $g(t)$) за таких умов у середньому відсутня (у тому сенсі, що $\lim_{\{T\to\infty\}} \left\{T^{-1}\int dt\, g_T(t)\right\} = 0$), хоча будь-яка зміна енергії електрона можлива лише завдяки ненульовому значенню згаданого інтегралу.

Переходячи до ролі стрибків фази, слід відзначити, що у роботі [7] стрибки фази згадані лише при описі однієї з моделей, до якої застосовні результати, та при проведенні аналогії із зіткненним нагріванням. А саме, у вступі згадано модель плазми, складеної з областей, де наявні хвилі з однаковими амплітудами, але неузгодженими фазами, і електрон, проходячи межу, переходить у поле іншої хвилі. Слід підкреслити, що мова тут іде не про стрибки фази хвилі у фіксованій точці простору (така фаза при слабкій нелінійності змінюється з часом практично лінійно), а про стрибки фази, відповідні руху електрона відносно хвиль. Що стосується швидкої, з порушенням лінійності за часом, зміни фази хвилі у даній точці простору, то для її здійснення треба швидко перетворити різні види енергії, притаманні відповідній хвилі, і незмінність амплітуди може бути порушена. Втім, якщо у співвідношеннях (8,12,21) роботи [7], для темпу повільної зміни функції розподілу електронів, добутки вигляду $|\bar{E}|^2\, \tilde{V}(\omega)$ з відповідними $\omega$ замінити перетворами Фур'є кореляційної функції поля, то співвідношення залишаються застосовними і за наявності стрибків амплітуди. У будь-якому разі, отримані у [7,8] результати однакові для процесів з однаковою залежністю коефіцієнта кореляції компонент поля від часу, тож немає підстав пов'язувати ті результати зі стрибками якось визначеної фази.

До того ж, при спробі дати загальне визначення фази, для довільної залежності функції від часу, виникають певні проблеми. Якщо вимагати, щоб фазу у даний момент часу можна було визначити на основі інформації про зміну відповідної величини протягом обмеженого інтервалу часу, який передує даному моменту, вимагаючи також, щоб значення фази не залежало від вибору початку відліку часу та одиниць вимірювання часу та відповідної змінної величини, то різним ділянкам лінійного зростання додатної величини треба приписати однакове (з точністю до доданку $2\pi$) значення фази (у зв'язку з можливістю перевести кожну таку ділянку у частину головної діагоналі декартової площини з кінцем у точці $(1,1)$ відповідним лінійним перетворенням часу та самої величини), і тоді у випадку, коли апроксимація першої чверті періоду синусоїди виконується як завгодно великою сукупністю інтервалів лінійної залежності поля від часу, усім тим інтервалам має бути приписане однакове значення фази, а тоді немає граничного переходу визначеної так фази до звичайної фази синусоїдальної залежності. А якщо визначати фазу через приписування екстремумам та нулям значень фази, кратних $\pi/2$, доповнене якимись правилами інтерполяції, то тоді для визначення фази у даний момент часу буде потрібна інформація про те, коли у майбутньому буде досягнутий найближчий нуль або екстремум, і така фаза, для визначення якої потрібно знати майбутнє, не може бути причиною теперішнього значення будь-якої величини (зокрема, енергії електронів).

Щодо стрибків поля, слід, також, враховувати, що миттєва зміна нормальної до якоїсь поверхні компоненти напруженості електричного поля на ненульову величину потребує, за рівнянням Максвела для струмів, нескінченних значень дотичних до поверхні компонент магнітного поля або густин струмів.

## ЗДОБУТТЯ ЕНЕРГІЇ ЕЛЕКТРОНОМ У ПОЛІ ЗА НАЯВНОСТІ ТА ЗА ВІДСУТНОСТІ ЗІТКНЕНЬ

Як зазначено вище, збільшення енергії електрона у полі відбувається завдяки наявності потужності на резонансних частотах і зі стрибками поля безпосередньо не пов'язане. Зокрема, за відсутності сталого магнітного поля, збільшення енергії пробного електрона пов'язане з потужністю на нульовій частоті (зі сталою складовою електричного поля, яка виникає флуктуативно). Однак деяка подібність між стрибками поля та практично миттєвими змінами фази коливання електрона у синусоїдальному полі при зіткненнях з нейтралами існує, і, на перший погляд, може дати надію на якесь беззіткненне нагрівання електронів, подібне до зіткненного. Щоб порівняти можливості надати електрону потрібну енергію при коливаннях із зіткненнями та без зіткнень, розглянемо процес зіткненного нагрівання докладніше. Розглядаємо випадок, коли частота коливань значно більша від частоти зіткнень, тобто коливання не є дрейфовими.

Іонізація без зіткнень неможлива, а характерна довжина $\lambda$ прольоту електрона між пружними зіткненнями, зазвичай, значно менша від довжина $\lambda_1$ його прольоту між іонізаціями, $\lambda \ll \lambda_1$, і тому електрони до здійснення іонізації, у середньому, беруть участь у значній кількості пружних зіткнень. При поєднанні зіткнень з гармонійною зміною поля середня енергія електронів з часом збільшується. Якби була можливість керувати пружними зіткненнями та підставляти нейтрали під удар у моменти, коли поле змінює напрямок, щоб електрон не рухався проти поля, тоді б швидкість електрона збільшувалася лінійно за часом, а енергія – квадратично. У разі ж хаотичних зіткнень енергія електронів збільшується лінійно за часом (зіткненне нагрівання), у середньому, у розрахунку на одне зіткнення – на величину $2\,\bar{W}$, де $\bar{W}$ – усереднена за період коливальна енергія електрона, $\bar{W} = mu^2/4$, $u$ – амплітуда швидкості коливального руху [11, с. 98].

Для лавинного розмноження електронів у проміжку з характерним розміром $L$ потрібне виконання співвідношення $\lambda_i \le L$, а значить, в силу $\lambda \ll \lambda_i$, співвідношення $\lambda \ll L$. Тому рух електрона у проміжку є дифузійним, з коефіцієнтом дифузії $D \sim v^2 \tau_e$, де $v$ – характерна швидкість теплового руху електронів, $\tau_e$ – час між пружними зіткненнями, $\tau_e = v^{-1}\lambda$. Усереднений темп зміни середньоквадратичної відстані $z$ від якоїсь початкової точки та швидкості $v$ оцінюються співвідношеннями $(d/dt)z^2 \sim v^2\tau_e$ (дифузія) та $(d/dt)v^2 \sim (u^2/\tau_e)$ (зіткненне нагрівання), відповідно. Узявши відношення написаних співвідношень, отримуємо, що енергія $W$, здобута електроном при зіткненному нагріванні у змінному полі, пов'язана з дифузійним переміщенням $z$ співвідношенням

$$z^{-2}\ W \sim \lambda^{-2}\ \bar{W}\,. \qquad (6)$$

У разі ж гармонійних коливань без зіткнень з амплітудою коливального переміщення $A$ та відповідною амплітудою енергії $W_A$ при фіксованій частоті величина $A^{-2}\ W_A$ є незалежною від $A$. Підставляючи у співвідношення (6) $W_A$ замість $\bar{W}$ та $L$ замість $z$, для енергії, здобутої електроном з допомогою зіткнень при переміщенні на відстань $L$, одержуємо співвідношення

$$W \sim \left(L/\lambda\right)^2\ W_A = W_{AL/\lambda}\,,$$

тобто, коливання із зіткненнями дають збільшення енергії електрона, до виходу на межі, такого саме порядку, як давали б коливання без зіткнень з тією саме частотою коливань при амплітуді напруженості поля, більшій у $L/\lambda$ разів. Якщо ж у беззіткненних коливань фіксувати амплітуду поля та зменшувати частоту, то коливальна енергія електрона зі збільшенням амплітуди переміщення збільшується ще повільніше, і максимальне досяжне значення енергії ще менше. Тож, при русі у обмеженому розрядному проміжку та при обмеженні на величину амплітуди напруженості поля можливість збільшення енергії електрона без використання зіткнень, при будь-якій залежності поля від часу, виявляється не більшою, за порядком величини, від можливості збільшення його енергії з використанням зіткнень.

Спільним у хаотичних коливань без зіткнень та у кусково-синусоїдальних коливань із зіткненнями, зокрема, є те, що як при тих, так і при інших максимальна досяжна енергія електрона зменшується: при перших – порівняно з синусоїдальними, при других – порівняно з уявними коливаннями з керованими зіткненнями (при яких зіткнення відбувалися б у потрібні моменти часу). Різниця тут – у тому, що отримати для застосування синусоїдальне поле порівняно легко (і немає потреби погіршувати процес здобуття електроном енергії заміною синусоїдального або кусково-постійного поля якимось складно змінним), а керувати зіткненнями нереально (тож залишається користуватися хаотичними зіткненнями). А залежність від частоти вигляду $\left(1+\omega^2\tau^2\right)^{-1}$, для темпу збільшення енергії електрона, як у стохастичному полі без зіткнень, так і у синусоїдальному із зіткненнями, пов'язана із залежністю від часу вигляду $\exp(-t/\tau)$ (при $t>0$), яка може характеризувати як експоненційне загасання кореляцій, так і експоненційну релаксацію через випадкові зіткнення. Але головна перевага кусково-синусоїдальних коливань із зіткненнями над суто синусоїдальними, по відношенню до процесу здобуття електроном енергії, – не у хаотичності зіткнень, а просто у їхній наявності, і якби можна було керувати зіткненнями, електрон здобував би енергію ще швидше. І введення випадковості у коливання без зіткнень не збільшує максимальної енергії електрона у проміжку, принаймні, за порядком величини.

## ВИСНОВКИ

Отже, розгляд зміни енергії електрона у стохастично даному полі показує, що отримане у роботі [7] нагрівання плазми випадковим полем може бути пояснене перерозподілом спектральної густини потужності та появою певної потужності поблизу резонансних частот. Для вільного електрона, за відсутності сталого магнітного поля, це просто означає, що зміна енергії електрона визначається його прискоренням, хоча граничне значення середнього прискорення, при необмеженому збільшенні інтервалу усереднення, може дорівнювати нулю. Зі стрибками поля поступове збільшення енергії електрона з часом безпосередньо не пов'язане: воно може бути і його може не бути як за наявності, так і за відсутності стрибків.

Крім того, оскільки переріз пружних зіткнень значно більший від перерізу іонізації, наявність процесів іонізації у експерименті свідчить про інтенсивні зіткнення та про пов'язане з ними нагрівання електронів у змінному полі, докладеному до розрядного проміжку. Таке нагрівання робить основний внесок у процес запалювання розряду.

А ускладнення залежності поля від часу, порівняно зі звичайною синусоїдальною, практично не дає переваг для процесу збільшення енергії електронів, і заміна хаотично змінного поля гармонійно змінним не зменшила б ефективності процесів. Втім, дослідження надвисокочастотного розряду у хаотичному полі мають самостійне значення, моделюючи процеси у різних системах, у яких таке поле утворюється тим чи іншим шляхом.

Автор вдячний В.І. Карасю, І.М. Онищенко, В.А. Балакірєву, В.О. Буцу та В.В. Огнівенко за докладні обговорення та цінні критичні зауваження.

**СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ**

1. Karas' V.I., Faynberg Ya.B., Alisov A.F., Artamoshkin A.M., Bingkham R., Gavrilenko I.V., Levchenko V.D., Lontano M., Mirnyy V.I., Potapenko I.F., Starostin A.N. Vzaimodeystvie s plazmoy ili gazami mikrovolnovogo izlucheniya so stokhasticheski prygayushchey fazoy // Fizika plazmy. – 2005. - T.31, №9. - C.810–822.
2. Karas' V.I., Levchenko V.D. Penetration of microwave with a stochastic jumping phase (MSJP) into overdense plasmas and electron collisionless heating by it // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya «Plazmennaya elektronika i novye metody uskoreniya» (3). – 2003. - №4. - S.133–136.
3. Alisov A.F., Artamoshkin A.M., Zagrebel'nyy I.A., Zemlyanskiy N.M., Karas' V.I., Faynberg Ya.B., Solodovchenko S.I., Shtan' A.F. Eksperimental'noe issledovanie prokhozhdeniya mikrovolnovogo izlucheniya so stokhasticheski prygayushchey fazoy (MVISPF) v sverkhplotnoy plazme // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya «Plazmennaya elektronika i novye metody uskoreniya» (3). – 2003. - №4. - S.69–73.
4. Karas' V.I., Alisov A.F., Artamoshkin A.M., Bingkham R., Mirnyy V.I., Gavrilenko I.V., Zagrebel'nyy I.A., Potapenko I.F., Us V.A. Proboy i podderzhanie razryada v gaze nizkogo davleniya SVCh-izlucheniem so stokhasticheski prygayushchey fazoy (I) // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya «Plazmennaya elektronika i novye metody uskoreniya» (5). – 2006. - №5. - S.54–58.
5. Karas' V.I., Alisov A.F., Artamoshkin A.M., Bingham R., Gavrilenko I.V., Zagorodny A.G., Zagrebel'ny I.A., Lontano M., Mirny V.I., Potapenko I.F., Us V.I. Breakdown and discharge in low-pressure gas created by a microwave radiation undergoing stochastic phase jumping (II) // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya «Fizika plazmy» (12). – 2006. - №6. - S.163–165.
6. Alisov A.F., Artamoshkin A.M., Golota V.I., Karas' V.I., Karas' I.V., Man'kovskiy S.N., Mirnyy V.I., Taran G.V. Zavisimost' porogovoy moshchnosti proboya ot davleniya gaza v razlichnykh rezhimakh raboty generatora SVCh-izlucheniya so skachkami fazy // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya «Plazmennaya elektronika i novye metody uskoreniya» (6). – 2008. - №4. - S.199–203.
7. Bass F.G., Faynberg Ya.B., Shapiro V.D. Kvazilineynaya teoriya slaboturbulentnoy plazmy s uchetom korrelyatsii elektricheskikh poley // Zhurnal eksperimental'noy i teoreticheskoy fiziki. – 1965. - T.49, vyp.1(7). - S.329–334.
8. Bliokh Yu.P., Lyubarskiy M.G., Podobinskiy V.O., Faynberg Ya.B. Nagrev ionosfernoy plazmy stokhasticheskim elektromagnitnym izlucheniem // Fizika plazmy. – 1993. - T.19, №3. - S.442–444.
9. Levin B.R. Teoreticheskie osnovy statisticheskoy radiotekhniki. - M.: Radio i svyaz', 1989. – 656s.
10. Yaglom A.M. Korrelyatsionnaya teoriya statsionarnykh sluchaynykh funktsiy. - L.: Gidrometeoizdat, 1981. – 280s.
11. Rayzer Yu.P. Fizika gazovogo razryada. M.: Nauka, 1992. – 536s.

*УДК 539.122.17*

# ИЗМЕРЕНИЕ УГЛОВОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ МЕТОДОМ НА ОСНОВЕ ХРИ

**А.С. Деев**
ИФВЭЯФ ННЦ ХФТИ
*ул. Академическая 1, г. Харьков, 61108, Украина*
*e-mail: deev@kipt.kharkov.ua*
Received 4 September 2012, accepted 8 November 2012

В рамках программного кода GEANT 4.9.2 рассчитаны спектрально-угловые характеристики тормозного излучения электронов для аморфных мишеней. Для мишеней из Si и W различной толщины рассчитаны угловые распределения выхода тормозного излучения $N_\gamma(\theta)$ при различных значениях энергии электронов $E_e$ = 30…1200 МэВ. Показано, что ширина угловых распределений на полувысоте $\theta_{1/2}$ уменьшается с ростом $E_e$ и возрастает с увеличением атомного заряда и толщины мишеней. Моделировалось взаимодействие тормозного излучения электронов с материалом вторичных мишеней, в которых возбуждается характеристическое рентгеновское излучение (ХРИ). Расчеты проведены для вторичных мишеней с различными поперечными размерами, соответствующими заданным значениям телесного угла, выделяющего часть потока тормозного излучения. Рассчитанные угловые зависимости выхода ХРИ сравнивались с соответствующими угловыми распределениями тормозного излучения.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** тормозное излучение, ХРИ, угловые распределения, моделирование, GEANT 4.9.2

## MEASUREMENTS OF ANGULAR DISTRIBUTIONS OF ELECTRON BREMSSTRAHLUNG METHOD BASED ON CXR

**O.S. Deiev**
*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"*
*61108, Academichna str. 1, Kharkiv, Ukraine*
The spectral-angular characteristics of the electrons bremsstrahlung from amorphous targets were calculated in program code GEANT 4.9.2. The angular distributions of the bremsstrahlung yield from Si and W targets with different thickness for electron energy $E_e$ = 30…1200 MeV were calculated. It is shown that the width angular distributions $N_\gamma(\theta)$ at half maximum $\theta_{1/2}$ decreased with increasing $E_e$ and increased with increasing Z and targets thickness. The interaction of electron bremsstrahlung with the secondary targets material was modeled in which characteristic X-ray radiation (CXR) are excited. The calculations for the secondary targets with different transverse size corresponding to given values of the solid angle, which selected the portion of bremsstrahlung flux, were performed. Calculated angular dependence of CXR and the corresponding angular distributions of bremsstrahlung are compared.
**KEY WORDS:** bremsstrahlung **,** CXR, angular distributions, modeling, GEANT 4.9.2

## ВИМІРЮВАННЯ КУТІВ РОЗПОДІЛУ ГАЛЬМІВНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ ЕЛЕКТРОНІВ МЕТОДОМ НА ОСНОВІ ХРВ

**О.С. Деєв**
*ІФВЕЯФ ННЦ ХФТІ*
*вул. Академічна 1, м. Харків, 61108, Україна*
У рамках програмного коду GEANT 4.9.2 розраховані спектрально-кутові характеристики гальмівного випромінювання електронів для аморфних мішеней. Для мішеней з Si і W різної товщини розраховані кутові розподіли виходу гальмівного випромінювання $N_\gamma(\theta)$ при різних значеннях енергії електронів $E_e$ = 30 ... 1200 МеВ. Показано, що ширина кутових розподілів на напіввисоті $\theta_{1/2}$ зменшується з ростом $E_e$ і зростає із збільшенням атомного заряду і товщини мішеней. Моделювалася взаємодія гальмівного випромінювання електронів з матеріалом вторинних мішеней, в яких збуджується характеристичне рентгенівське випромінювання (ХРВ). Розрахунки проведено для вторинних мішеней з різними поперечними розмірами, відповідними заданим значенням тілесного кута, що виділяє частину потоку гальмівного випромінювання. Розраховані кутові залежності виходу ХРВ порівнюються с відповідними кутовими розподілами гальмівного випромінювання.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** гальмівне випромінювання, ХРВ, кутові розподіли, моделювання, GEANT 4.9.2

Измерение спектров интенсивного рентгеновского излучения при каналировании электронов в кристаллах сопряжено с трудностями из-за большого потока квантов в импульсе. Такие импульсы будут насыщать любой детектор и измерительную систему, использование амплитудного анализа в этом случае затруднено. Перед детекторами, чувствительными к потоку фотонов, помещают вторичные мишени-рассеиватели, преобразующие первичное излучение во вторичное, значительно меньшее по интенсивности. Выбор системы преобразования (переизлучения, фильтрации) зависит от энергии рентгеновского излучения. Затем измеренный спектр вторичного излучения обрабатывают, восстанавливая спектр первичного излучения. В настоящее время применяются, например, системы преобразования излучения с помощью комптоновского рассеяния [1,2], путем измерения характеристического рентгеновского излучения (ХРИ) [3,4], на основе фильтра Росса [5,6].

© Deiev O.S., 2012

Оценка спектрально-угловых характеристик тормозного излучения необходима для предсказания интенсивности излучения под малыми углами, а также значений фонового излучения под большими углами. Программный код GEANT 4 позволяет провести такие расчеты для случая аморфной мишени.

Взаимодействие электронов и гамма-квантов со средой реализовано в GEANT 4 с учетом основных физических процессов [7,8]. В приближении Electromagnetic\LowEnergy для гамма-квантов учтены фотоэффект, процессы комптоновского (неупругого) и рэлеевского (упругого) рассеяния, образование электрон-позитронных пар. Для электронов учитывается ионизация, многократное рассеяние и тормозное излучение. В коде GEANT 4.9.2 табулированы результаты обработки спектров тормозного излучения для электронов с энергией в диапазоне $E_e$ = 1 кэВ…10 ГэВ для атомных зарядов Z = 6, 13, 29, 47, 74, 92.

Цель настоящей работы: 1. Использовать возможности программного кода GEANT 4 для расчета энергетических и угловых зависимостей выхода тормозного излучения; 2. Оценить спектрально-угловые характеристики ХРИ, возбуждаемого во вторичной мишени, установленной на пути тормозного излучения, для определенной энергии электронов и вещества вторичных мишеней.

## МЕТОДИКА РАСЧЕТОВ

В рамках программного кода GEANT 4 рассчитывались спектрально-угловые характеристики тормозного излучения электронов, выходящего из аморфных мишеней с различным зарядом. Расчетные спектры излучения имели характерную зависимость выхода гамма-квантов $N(E_\gamma) \sim 1/E_\gamma$ и преобразовывались в интенсивность излучения $N_\gamma \times E_\gamma/\Delta E_\gamma/N_e$, где $N_\gamma$ - число гама-квантов с энергией в интервале ($E_\gamma$; $E_\gamma + \Delta E$), $N_e$ - число падающих электронов). Интенсивность излучения существенно зависит от параметров эксперимента: энергии электронов $E_e$, атомного заряда атомов мишени-конвертора, ее толщины, телесного угла регистрации квантов и др.

Зависимости выхода тормозного излучения от угла определяли двумя способами. В первом случае суммировались гамма кванты $N_\gamma$ в диапазоне энергий ($E_\gamma$; $E_\gamma + \Delta E$) в зависимости от сферического угла θ. Значения азимутального угла φ находятся в интервале (0; 2π). В итоге получалась зависимость числа квантов $N_\gamma(\theta)$, попадающих в телесный угол $2\pi\times(1-\cos(\theta))$. Число квантов плавно нарастало при увеличении θ от 0 до 1,57 радиан. Максимальным значением считалось $N_\gamma(1,57)$, что соответствует полному числу излученных квантов, попадающих в переднюю полусферу. Полушириной углового распределения считали угол $\theta_{1/2}$ при котором число зарегистрированных квантов равно $N_\gamma(1,57)/2$.

Во втором случае зависимость $N_\gamma(\theta)$ преобразовывались в интенсивность излучения и нормировалась на телесный угол регистрации. Такая величина плавно уменьшалась с ростом угла θ. Полушириной углового распределения считали угол $\theta_{1/2}$, при котором нормированное значение интенсивности составляло половину максимального. Полуширины для двух подходов дают близкие значения.

Зависимости выхода ХРИ из вторичных мишеней от угла расположения вторичной мишени определяли аналогичным образом. Вторичная мишень выбрана в виде сферы, заполняющей телесный угол $2\pi\times(1-\cos(\theta))$.

## УГЛОВЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Полученные величины интенсивностей излучения $N_\gamma \times E_\gamma/\Delta E_\gamma/N_e$ превышали экспериментальные данные [9,10] на 10…25% для различных толщин Be, Si при различных телесных углах регистрации излучения. Расхождение увеличивается с ростом толщины кристалла и атомного заряда. Так, для мишени из W расчет отличался от эксперимента на 30…50%. В эксперименте θ составляло 0,2…0,4 мрадиан.

Рассчитаны угловые распределения выхода излучения для мишени из Si, толщиной 1 мм при энергии электронов $E_e$ = 30, 300 и 1200 МэВ. На рис. 1 представлены угловые распределения интенсивности излучения, нормированного на телесный угол для $E_e$ = 300 и 1200 МэВ. Зависимости от угла заметно шире при более низких энергиях электронов. Угловые ширины $\theta_{1/2}$ на полувысоте распределений составили для 30 МэВ – 0,036 рад, 300 МэВ – 0,0038 рад, 1200 МэВ – 0,00096 рад. При фиксированной толщине Si, 1мм имеем пропорциональное энергии $E_e$ уменьшение $\theta_{1/2}$ с увеличением $E_e$.

На рис. 2 представлены расчетные угловые зависимости излучения для мишеней Li, Si и W толщиной t = 1мм. Для удобства сравнения расчетные данные нормировались на максимум интенсивности.

Величина $\theta_{1/2}$ существенно возрастает с ростом заряда атомов мишени. Отметим, что для Pt толщиной 1мм при $E_e$=30 МэВ величина полуширины становится очень большой ($\theta_{1/2}$=0,2 рад для $E_\gamma$>1 МэВ).

На рис. 3 представлены расчетные зависимости выхода гамма-квантов от толщины кремния для энергий электронов 30, 300 и 1200 МэВ. Зависимости имеют выход на максимум при толщине Si около 15мм для $E_e$=30, 300 МэВ и 30мм для $E_e$ = 1200 МэВ. При дальнейшем увеличении толщины мишеней выход квантов начинает уменьшаться. Для $E_e$=1200 МэВ, $E_\gamma$=30…50 МэВ, $N_e$=$10^7$, θ=0,35 мрад падение выхода при t = 65 мм составляет 10%. Интенсивности излучения, нормированные на равный телесный угол отличаются в области малых углов примерно на порядок для энергий 300 и 1200 МэВ. Это удовлетворительно согласуется с нашими экспериментами по измерению преобразования энергии электронов в гамма-излучение [9,10]. При расчетах угловых зависимостей выхода излучения использованы толщины мишеней, значительно меньшие толщин, характерных для насыщения выхода излучения.

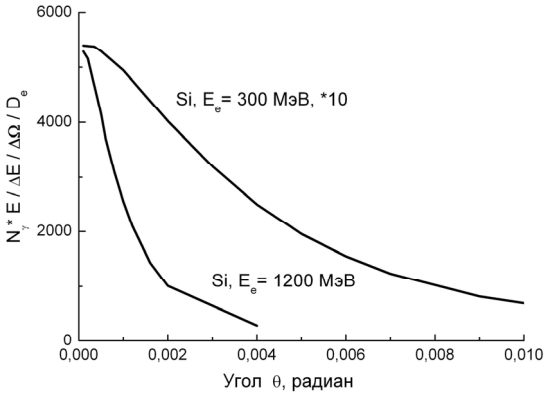



Рис.1. Угловые зависимости нормированных интен- сивностей излучения из Si, t=1 мм: $E_e$=300 МэВ, $E_\gamma$=5…100 МэВ, $N_e=10^8$ и $E_e$=1200 МэВ, $E_\gamma$=30…50 МэВ, $N_e=10^7$

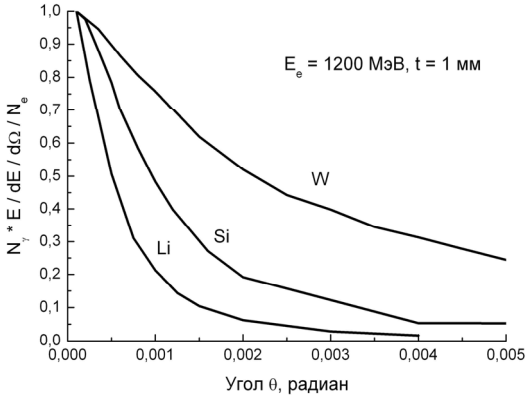



Рис.2. Угловые зависимости нормированных интенсивностей излучения из Li, Si, W, с толщиной t=1 мм: $E_e$ = 1200 МэВ, $E_\gamma$= 5…100 МэВ, $N_e = 10^8$

На рис.4 представлены угловые полуширины $\theta_{1/2}$ на полувысоте распределений излучения $N_\gamma(\theta)$ в зависимости от толщины мишени-конвертора из вольфрама W (толщина t, мм) при различных энергиях электронов. Суммировались кванты с $E_\gamma > 1$ МэВ.

Имеет место обратная пропорциональность полуширины углового распределения излучения $\theta_{1/2} \sim 1/E_e$ при одинаковых толщинах мишеней. Наблюдается заметное увеличение величины расчетных угловых полуширин $\theta_{1/2}$ с ростом толщины конвертора из W.

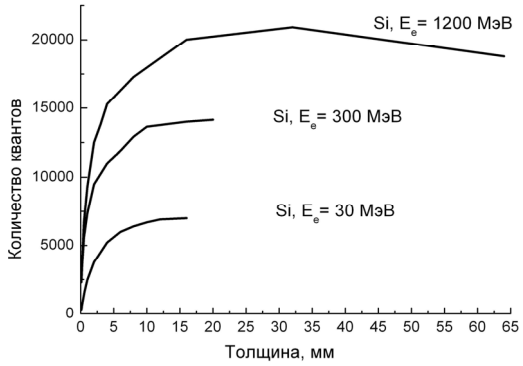



Рис.3. Выход гамма-квантов излучения в зависимости от толщины Si (мм).
$E_e$ = 30 МэВ, $E_\gamma$= 1…30 МэВ, $N_e = 10^5$, θ = 0,05 рад, $E_e$ = 300 МэВ, $E_\gamma$= 5…100 МэВ, $N_e = 2\cdot10^7$ , θ = 0,35 мрад и $E_e$ = 1200 МэВ, $E_\gamma$= 30-50 МэВ, $N_e = 10^7$ , θ = 0,35 мрад

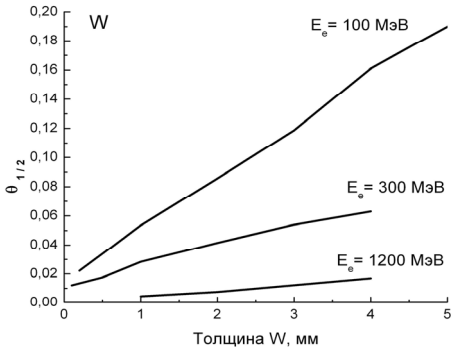



Рис.4. Угловые ширины $\theta_{1/2}$ (рад) на полувысоте распределений $N_\gamma(\theta)$ в зависимости от толщины W, мм при различных энергиях электронов.
$E_e$ = 100 МэВ (вверху), 300 МэВ, 1200 МэВ (внизу)

В GEANT 4 имеется возможность математически отключать различные физические процессы при моделировании взаимодействия частиц с атомами вещества. При отключении процесса многократного рассеяния электронов наблюдается существенное уменьшение угловой полуширины распределения излучения. Так для $\theta_{1/2}$ в W получены следующие результаты: $\theta_{1/2}$ =0,002 рад при $E_e$ = 1200 МэВ, t = 4 мм ($\theta_{1/2}$ уменьшается в 8,4 раз по отношению к $\theta_{1/2}$ , рассчитанной при учете всех процессов). Величина $\theta_{1/2}$ = 0,011 рад при $E_e$ = 100 МэВ, t= 2 мм ($\theta_{1/2}$ уменьшилась в 7,8 раз).

Таким образом, расчеты в GEANT 4 подтверждают, что увеличение угловых полуширин $\theta_{1/2}$ на полувысоте распределений $N_\gamma(\theta)$ с увеличением заряда атомов мишени либо ее толщины обусловлено в первую очередь многократным рассеянием электронов. Суммарное излучение в переднюю полусферу от многократного рассеяния не зависит.

## УГЛОВЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЫХОДА ХРИ

На пути тормозного излучения помещались вторичные мишени, в которых возбуждалось ХРИ и рассчитывались угловые зависимости выхода ХРИ, получаемые путем изменения углового размера вторичной мишени, расположенной симметрично относительно оси пучка тормозных фотонов.

Схема расчетного эксперимента по возбуждению ХРИ тормозным излучением электронов представлена на рис. 5. Тормозное излучение возникает при попадании электронов на аморфную мишень-конвертор (м1). Затем электроны отсекаются программно. Тормозное гамма излучение попадает на сферическую вторичную мишень (м2), где происходит генерация ХРИ. Таким образом, моделируется взаимодействие тормозного излучения с материалом вторичных мишеней. ХРИ регистрируется под большим углом детектором (Д). Меняя угол θ от 0 до π/2 путем изменения размера вторичной мишени, получаем зависимости выхода ХРИ от угла, вырезаемого

вторичной мишенью, которые сравниваем с распределением по углу θ тормозного излучения.

В расчетах для выбранной толщины первичной мишени-конвертора моделировались спектры тормозного излучения электронов. Затем эти спектры в рентгеновской области энергий разбивались на интервалы ($E_\gamma$; $E_\gamma$ +ΔE), в каждом из интервалов суммировались тормозные кванты для определенного вторичной мишенью угла θ - $N_\gamma(\theta)$. Для каждого выбранного энергетического интервала строилась отдельная угловая зависимость числа гамма-квантов в интервале от угла θ (рис. 6). Нормировка проводилась на величину $N_\gamma(1,57)$.

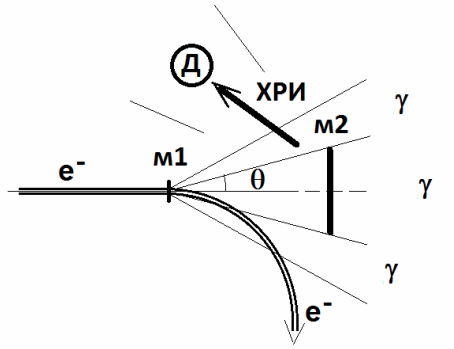



Рис. 5. Схема расчетного эксперимента по возбуждению ХРИ тормозным излучением электронов.
Слева – электроны $e^-$, γ -тормозное излучение, м1 – мишень-конвертор, Д – детектор квантов ХРИ, м2 – вторичная мишень.

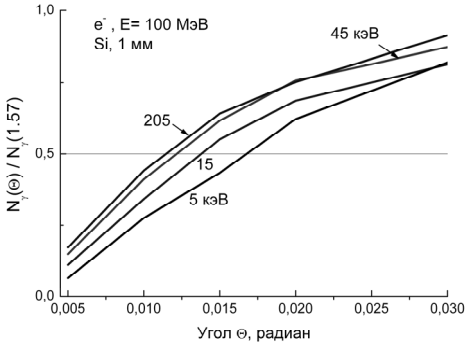



Рис. 6. Угловая зависимость тормозного излучения электронов в рентгеновской области $N_\gamma(\theta)/N_\gamma(1,57)$.
Выделены участки спектра ($E_\gamma$; $E_\gamma$ +ΔE): 0-5, 5-15, 15-45 и 45-205 кэВ. $E_e$= 100 МэВ, мишень Si, 1мм.

Имеется различия в полуширинах углового распределения тормозного излучения для различных значений энергии $E_\gamma$ регистрируемых квантов. Наиболее значительное изменение полуширины наблюдается в интервале энергий $E_\gamma$ от 5 до 45 кэВ. Для квантов с большими энергиями различие полуширин нивелируется. Причиной такого поведения угловых зависимостей являются процессы рассеяния тормозных квантов в материале мишени. Различие полуширин будет усиливаться с увеличением толщины первичной мишени.

Затем рассчитывались полуширины углового распределения выхода ХРИ для легких и тяжелых элементов вторичной мишени. Как известно, ХРИ возбуждается квантами с энергией, превышающей энергию К-края возбуждения для конкретного материала. Для тонких вторичных фольг энергетический интервал тормозных квантов, определяющий вклад в суммарный выход ХРИ, превышает энергию К-края приблизительно на 10-15 кэВ для легких элементов и на 20-35 кэВ для тяжелых элементов вторичной мишени [4]. Этим интервалом энергий будет усредняться выход ХРИ, что приведет к уменьшению различия в ширинах угловых распределений ХРИ.

На рис. 7 представлены угловые зависимости выхода тормозного излучения $N_\gamma(\theta)/N_\gamma(1,57)$ электронов с $E_e$= 30 МэВ для Si толщиной 1 мм. Здесь же представлены угловые зависимости выхода ХРИ, возбуждаемого тормозным излучением во вторичных мишенях из Cu и Ag толщиной 0,1 мм. На рис. 8 представлены аналогичные зависимости для $E_e$= 100 МэВ для мишени из W толщиной 1 мм, вторичные мишени из U и Sn толщиной 0,5 мм.

Вид угловых зависимостей выхода ХРИ, возбуждаемого тормозным излучением во вторичных мишенях аналогичен виду зависимостей тормозного излучения. Полуширины угловых распределений на рис. 7 практически совпадают.

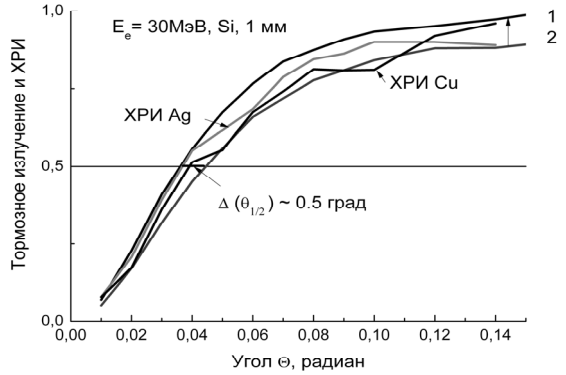



Рис. 7. Угловые зависимости выхода тормозного излучения электронов с $E_e$= 30 МэВ для Si толщиной 1 мм.
1 - $E_\gamma$ > 1 МэВ, 2 - 5-25 кэВ. Угловые зависимости выхода ХРИ из Cu и Ag мишеней толщиной 0,1 мм.

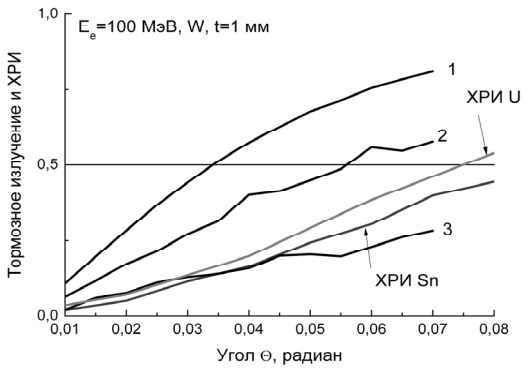



Рис. 8. Угловые зависимости выхода тормозного излучения электронов с $E_e$= 100 МэВ для W, 1 мм.
1 - $E_\gamma$ > 1 МэВ, 2 - 100-150 кэВ, 3 - 5-50 кэВ. Угловые зависимости выхода ХРИ из U и Sn, 0,5 мм.

На рис. 6,7 отличие в значениях полуширин углового распределения тормозного излучения электронов для

различных $E_\gamma$ составляет ~0,5° , а на рис. 8 превышает 1°.

Предполагалось, что с уменьшением энергии К-края поглощения (уменьшением атомного заряда элементов вторичной мишени) мы будем наблюдать постепенное увеличение величины угловой полуширины распределения выхода ХРИ. Такая тенденция подтвердилась в расчетах (рис. 8), но в силу незначительного отличия ширин углового распределения для тормозного излучения и имеющихся погрешностей усреднения выхода ХРИ, возбуждаемого квантами с различными энергиями, получить заметный эффект сложно.

Так, в случае $E_e$= 30 МэВ для Si толщиной 1 мм и применения Am фольги 0,5 мм не удается увидеть достоверного различия расчетных полуширин выхода ХРИ для K- (0,0335 рад) и L-линий (0,0345 рад). Не удается различить также угловые полуширины выхода ХРИ из Cu и Ag мишеней (рис. 7).

## ВЫВОДЫ

Проведены расчеты спектрально-угловых характеристик излучения электронов в зависимости от атомного заряда атомов мишени, ее толщины, энергии электронов. Рассчитаны угловые зависимости выхода ХРИ, возбуждаемого потоком тормозных квантов.

Результаты расчетов интенсивности излучения, проведенные в данной работе, близки к экспериментально измеренным в [3,4] и позволяют сделать вывод о возможности использования программного кода GEANT 4.9.2 для моделирования излучения электронов из аморфных мишеней.

Имеет место обратная пропорциональность полуширины углового распределения $\theta_{1/2}$ на полувысоте распределений $N_\gamma(\theta)$ от энергии электронов $E_e$ при одинаковой толщине мишеней из Si и W. Наблюдается заметное увеличение расчетной угловой полуширины $\theta_{1/2}$ с ростом толщины мишеней. Возрастание угловой полуширины $\theta_{1/2}$ с увеличением заряда атомов мишени и ее толщины обусловлено, в первую очередь, многократным рассеянием электронов. Суммарное излучение в переднюю полусферу не зависит от многократного рассеяния.

Имеются различия в полуширине углового распределения выхода тормозного излучения для различной энергии $E_\gamma$ регистрируемых квантов. Наиболее значительные отличия полуширины наблюдаются в области $E_\gamma$ от 5 до ~100 кэВ. Причиной такого поведения угловых зависимостей являются процессы рассеяния тормозных квантов в материале первичной мишени.

Для различных значений углового размера вторичной мишени, проведены расчеты, позволившие получить угловые зависимости выхода ХРИ. Угловая ширина выхода ХРИ, возбуждаемого тормозным излучением во вторичных мишенях численно близка к угловым распределениям тормозного излучения. Это подтверждает принципиальную возможность применения метода, основанного на измерении ХРИ из вторичных мишеней, для определения угловых распределений высокоинтенсивного тормозного излучения.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wagner W., Azaderan B., Sobiella M. et al. An intense channeling radiation source // Nucl. Instr. Meth. B. - 2008. - Vol.266. - P. 327-334.
2. Bochek G.L., Deev A.S., Maslov N.I. Ob izmerenii energeticheskikh raspredeleniy tormoznogo izlucheniya s ispol'zovaniem komptonovskogo rasseyaniya // Poverkhnost'. Rentgenovskie, sinkhrotronnye i neytronnye issledovaniya. - 2012, № 4. - S.75-80.
3. Azartsov A.M., Bochek G.L., Vasil'ev G.P. i dr. O vozmozhnosti issledovaniya spektral'nykh kharakteristik intensivnogo rentgenovskogo izlucheniya elektronov srednikh energiy v kristallakh // Visnik KhNU, seriya fizichna «Yadra, chastinki, polya». - 2009. - № 868, vip. 3 /43/. – S. 86-95.
4. Deev A.S. Vosstanovlenie spektral'nykh kharakteristik izlucheniya elektronov v kristallakh po otnositel'nym vykhodam KhRI iz vtorichnykh misheney // Visnik KhNU, seriya fizichna «Yadra, chastinki, polya». - 2012. - № 991, vip. 1 /53/. – S. 35-40.
5. Johnson D.J. Study of the x-ray production mechanism of a dense plasma focus // Journal of Applied Physics. – 1974. - Vol. 45, №3. - P. 1147-1153.
6. Carrigan R.A., Sellschop Jr., Sellschop J.P.F. Electron channeling radiation at very high electron bunch charges // Physical Review A. – 2003. - Vol. 68. - P. 062901.
7. Electron and Positron Incident. http://geant4.web.cern.ch/geant4/UserDocumentation/ Users Guides/PhysicsReferenceManual/ BackupVersions/ V9.3/fo/PhysicsReferenceManual.pdf
8. Seltzer S.M., Berger M.J. Bremsstrahlung spectra from electron interactions with screened atomic nuclei and orbital electrons // Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. – 1985. – Vol. B12. - P.95-134.
9. Adeishvili D.I., Antipenko A.P., Blazhevich S.V. et al. Apparatus for measurement of spectral and angular distributions of gamma quanta at exit from LUE-2000 linear accelerator // Inst. and Exp. Techn. - 1991. - Vol.34, №2. - Part 1. - P.294.
10. Bochek G.L., Kulibaba V.I., Maslov N.I. et al. Gamma radiation characteristics of 1.2 GeV electrons in thick silicon single crystals // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. - 2001. - Vol.173. – P.121-125.

УДК 538.9

# РЕЛЯТИВИСТСКИЕ УРАВНЕНИЯ ПЕРЕНОСА В ТОРОИДАЛЬНОЙ ПЛАЗМЕ

**И.Н. Марущенко, Н.А. Азаренков**
*Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина*
*пр. Курчатова 31, 61108 Харьков, Украина*
*E-mail: i.marushchenko@gmail.com*
Received 24 October 2012, accepted 15 November 2012

В статье предлагается релятивистская формулировка для уравнений неоклассического столкновительного переноса в горячей плазме, удерживаемой в тороидальных системах, сохраняющая формальную структуру стандартной (нерелятивистской) теории и позволяющая включить релятивистское рассмотрение в стандартные транспортные коды с минимальными изменениями. Все формулировки базируются на релятивистских дрейфовых уравнениях движения и релятивистском дрейфово-кинетическом уравнении. Благодаря прозрачной физической интерпретации и формальному сходству с общепринятой теорией столкновительного переноса предлагаемая формулировка позволит произвести количественную верификацию области применимости нерелятивистских результатов предсказываемых неоклассической теорией переноса в горячей плазме.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** релятивистская плазма, кинетика, неоклассическая теория переноса.

## RELATIVISTIC TRANSPORT EQUATIONS IN TOROIDAL PLASMAS

**I. Marushchenko, N.A. Azarenkov**
*V. N. Karazin Kharkiv National University*
*31 Kurchatov St., Kharkov, 61108, Ukraine*
Relativistic formulation for the equations describing a neoclassical collisional transport in hot plasmas confined in toroidal systems, which conserves a formal structure of the standard (non-relativistic) theory and allows to include the relativistic consideration in the standart transport codes with minimal changes, is proposed. All formulations are based on the relativistic drift equations of motion and relativistic drift-kinetic equation. Due to a transparent physical interpretation and formal similarity to the generally accepted theory of collisional transport, the proposed formulation allows one to produce a quantitative verification of the validity range of nonrelativistic results predicted by the neoclassical transport models in hot plasmas.
**KEY WORDS:** relativistic plasma, kinetics, transport equations.

## РЕЛЯТИВІСТСЬКІ РІВНЯННЯ ПЕРЕНОСУ У ТОРОІДАЛЬНОЙ ПЛАЗМІ

**І.М. Марущенко, М.О. Азарєнков**
*Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна*
*пр. Курчатова 31, 61108 Харків, Україна*
У статті запропоновано релятивістське формулювання для рівнянь неокласичного зіткневого переносу у гарячій плазмі, що утримується у тороїдальних системах, яке зберігає формальну структуру стандартної (нерелятивістської) теорії та дозволяє включити релятивістське розглядання у стандартні транспортні коди з мінімальними змінами. Усі формулювання базуються на релятивістських дрейфових рівняннях руху та релятивістському дрейфово-кінетичному рівнянні. Завдяки прозорої фізічної інтерпретації та формальному східству з загальноухваленою теорією зіткневого переносу запропоноване формулювання дозволить провести кількісну верифікацію області застосовності нерелятивістських результатів, що передбачаються неокласичною терією переносу в гарячій плазмі.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** релятивістська плазма, кінетика, рівняння переносу.

Релятивистский подход к описанию плазмы вызывает в последние годы значительный интерес. Понимание того, что плазма в астрофизике должна рассматриваться как релятивистская [1], привело к развитию ковариантного лоренцевского формализма в кинетике и статистической физике [2], на основе которого была развита самосогласованная релятивистская магнитогидродинамика [3]. Также были изучены специфические свойства кинетики и равновесия в релятивистской заряженной плазме [4,5]. Релятивистская кинетика была применена к изучению высокостолкновительной плотной плазмы, производимой мощным лазерным импульсом [6] и к столкновительной релаксации в плазме высокоэнергетических популяций электронов [7].

Поскольку ядерные реакции синтеза в термоядерных реакторах требуют высоких температур, роль релятивистских эффектов для электронов в тороидальных устройствах также становится актуальным вопросом. В принципе, релятивистские эффекты не оказывают сильного влияния на транспортные процессы в нынешних стеллараторах и токамаках, но они требуют изучения уже для строящегося сейчас ИТЭРа [8,9,10], где ожидаемые температуры будут на уровне 20 - 35 кэВ, и тем более для ДЕМО [11,12] и безнейтронных реакторов [13,14,15], которые потребуют температур порядка 60 - 100 кэВ.

Общее мнение о пренебрежимо малой роли релятивистских эффектов в процессах переноса основано на предположении, что они важны только лишь для высокоэнергетических электронов с энергиями порядка $m_{e0}c^2$ (например, убегающие электроны в токамаках [16]), тогда как основная масса электронов остается скорее нерелятивистской даже при высоких температурах. Но в то же время релятивистские эффекты могут возникать

© Marushchenko I., Azarenkov N.A., 2012

из макроскопических свойств распределения Юттнера [2], называемого также релятивистским распределением Максвелла [17]. В частности, в отличие от классической функции распределения Максвелла, форма релятивистского распределения Юттнера-Максвелла зависит от температуры и роль теплового ядра функции распределения с увеличением температуры уменьшается.

В данной работе предложены удобные релятивистские формулировки для уравнений баланса и радиальных потоков частиц и энергии, сохраняющие традиционную структуру уравнений столкновительного переноса в тороидальной плазме. При получении уравнений мы ограничились детальным рассмотрением лишь радиальных потоков частиц и тепла, поскольку рассмотрение параллельных потоков является более сложным и требует дополнительно решения задачи Спитцера [18,19] с учётом релятивистских эффектов, что является отдельной проблемой и будет рассмотрено в последующих работах.

Цель работы: предложить наиболее простую и удобную модель, учитывающую релятивистские эффекты, для количественной верификации области применимости нерелятивистских результатов, предсказываемых неоклассической теорией переноса в горячей плазме.

## ОБЩИЕ ОПРЕДЕЛЕНИЯ

Следуя стандартной процедуре вывода уравнений переноса [18,19], рассмотрение проблемы начнём с дрейфово-кинетического уравнения (ДКУ) для релятивистских электронов. При выводе уравнений неоклассического переноса в тороидальной плазме используются стандартные предположения о том, что плазма является сильно замагниченной, а такие её параметры как плотность и температура всех компонент плазмы являются функциями только метки магнитной поверхности ψ, т. е. $n_{e,i}(\psi)$ и $T_{e,i}(\psi)$.

Вводя в качестве переменных импульс на единицу массы покоя $u = p/m_{e0} = \gamma v$ (здесь $\gamma = (1 + u^2/c^2)^{1/2}$ - релятивистский фактор Лоренца) и питч $\xi = u_{\|}/u$, а также учитывая сохранение при движении электрона нормализованного магнитного момента, $\dot{\lambda} = 0$, где $\lambda = (1 - \xi^2)/b$ (здесь, $b = B/B_0$ - нормированное магнитное поле), дрейфово-кинетическое уравнение для функции распределения релятивистских электронов может быть написано в консервативной форме (все значения величин и все операторы здесь относятся к ведущему ларморовскому центру электронов):

$$\frac{\partial f_e}{\partial t} + \mathrm{div}(\dot{\mathbf{X}} f_e) + \frac{1}{u^2}\frac{\partial}{\partial u}(u^2 \dot{u} f_e) = C_e(f_e) + S. \qquad (1)$$

В правой части уравнения $S$ описывает внешний источник. Кулоновский оператор $C_e(f_e) = C_{ee}[f_e,f_e] + C_{ei}[f_e,f_i]$ должен быть рассмотрен в релятивистском приближении [17,20]. Ниже предполагается, что функция распределения ионов является максвелловской, $f_i = f_{iM}$, и нерелятивистское приближение при типичных для термоядерного синтеза температурах является для них совершенно достаточным.

Общее определение релятивистской дрейфовой скорости заряженных частиц в сильном магнитном поле произвольной геометрии, $\dot{\mathbf{X}}$, было получено в работах [21,22] путем формального разложения по малому параметру, в качестве которого было принято отношение ларморовского радиуса к характерному масштабу изменения магнитного поля. В рассматриваемом здесь случае достаточно применить упрощенную форму релятивистских дрейфовых уравнений движения [23], записанную в форме, принятой в теории переноса [18,19], где пренебрегается гамильтоновой несжимаемостью элемента фазового объёма (этот фактор важен в гирокинетике [18]). Опуская затем все члены пропорциональные $\nabla\times\mathbf{B}$, которые не дают вклада в процессы переноса, можно получить выражение для дрейфовой скорости,

$$\dot{\mathbf{X}} = \frac{u\xi}{\gamma}\mathbf{h} + \mathbf{V}_{dr}; \quad \mathbf{V}_{dr} = \frac{c}{B^2}[\mathbf{E}_\perp \times \mathbf{B}] + \frac{m_{e0} c u^2 (1+\xi^2)}{2e\gamma B^3}[\mathbf{B}\times\nabla B], \qquad (2)$$

где $\mathbf{h} = \mathbf{B}/B$ является единичным вектором в направлении магнитного поля, а $\mathbf{E}_\perp = -\nabla\Phi$ - радиальное электрическое поле. Первый член в выражении для $\mathbf{V}_{dr}$ описывает поперечный дрейф по поверхности, тогда как второй член описывает сдрейфовывание частиц с магнитной поверхности, из-за которого, собственно, и происходит генерация поперечных неоклассических потоков. В этом же приближении записывается уравнение для $\dot{u}$ (в предположении что $\partial\Phi/\partial t = \partial B/\partial t = 0$):

$$\dot{u} = \frac{e}{m_{e0}}\frac{\gamma}{u}\dot{\mathbf{X}}\cdot(E_\|^A \mathbf{h} + \mathbf{E}_\perp), \qquad (3)$$

где первый член в правой части описывает ускорение заряженных частиц за счёт продольного электрического поля, а второй член описывает работу радиального электрического поля, возникающую при поперечном дрейфе за счёт $\nabla B$.

Вывод уравнений переноса основан на предположении малости отклонения от теплового равновесия, описываемого для релятивистских электронов функцией распределения Юттнера-Максвелла [2,17], которую удобно представить в следующем виде [24]:

$$f_{eJM}(\psi,u) = \frac{n_e(\psi)}{\pi^{3/2}u_{th}^3} C_{JM}(\mu_r) e^{-\mu_r(\gamma-1)}. \qquad (4)$$

Здесь $\mu_r = m_{e0}c^2/T_e(\psi)$ и $u_{th} = p_{th}/m_{e0}$ - тепловой импульс на единицу массы с $p_{th} = \sqrt{2m_{e0}T_e(\psi)}$. Функция распределения нормализована на плотность, $\int d^3u\, f_{eJM} = n_e(\psi)$, и

$$C_{JM}(\mu_r) = \sqrt{\frac{\pi}{2\mu_r}}\frac{e^{-\mu_r}}{K_2(\mu_r)} \simeq 1 - \frac{15}{8\mu_r} + \ldots \; (\mu_r \gg 1), \tag{5}$$

где $K_n(x)$ - модифицированная функция Бесселя второго рода $n$-го порядка.

Отметим одно важное отличие от нерелятивистского случая: форма нерелятивистской функции Максвелла, задаваемая экспонентой $\exp(-x^2)$, никак не зависит от температуры, тогда как в релятивистском распределении Юттнера-Максвелла вес теплового ядра падает (этот эффект можно легко оценить из формулы (5)), а относительный вес хвостов возрастает с увеличением температуры $T_e$ (в этом легко убедиться, представив в (4) показатель экспоненты в виде $\mu_r(\gamma - 1) = 2x^2/(\gamma + 1)$, где $x = u/u_{th}$).

## РЕЛЯТИВИСТСКИЕ УРАВНЕНИЯ ПЕРЕНОСА

Градиенты плазменных параметров в тороидальной плазме вызывают возмущение в плазме, которое может быть представлено как отклонение функции распределения от термодинамически равновесного распределения Юттнера-Максвелла, $f_{e1} = f_e - f_{eJM}$ (как обычно, предполагается, что $\int d^3u\, f_{e1} = 0$, т.е. плотность остаётся невозмущённой). В тороидальной плазме $f_{e1}$ является в общем случае функцией не только импульса и магнитного момента, но и пространственных координат - тороидального и полоидального углов на данной магнитной поверхности, т.е. $f_{e1} = f_{e1}(\psi,\theta,\varphi;\ u,\lambda)$, и все одномерные уравнения переноса должны быть получены усреднением по магнитной поверхности ДКУ уравнения (1), взятого с соответствующим весом. Поскольку в данной работе нас интересуют лишь уравнения для моментов ДКУ в тороидальной плазме, являющихся транспортными уравнениями, здесь не обсуждаются способы решения соответствующего линейного дрейфово-кинетического уравнения для $f_{e1}$ (этот вопрос является предметом отдельного рассмотрения), но предполагается, что такое решение известно с достаточной точностью. Ниже предложена релятивистская формулировка одномерных уравнений переноса, а также даны определения потоков частиц, энергии и тепла в релятивистском приближении.

Интегрируя и усредняя (1) на магнитной поверхности, $\langle\int d^3u \ldots\rangle$, где $\langle A\rangle = (\int ds/B)^{-1}\int A\,ds/B$ (здесь, $ds$ - дифференциал вдоль магнитной силовой линии, покрывающей магнитную поверхность), мы получаем искомое уравнение баланса частиц,

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \frac{1}{V'}\frac{\partial}{\partial\psi}V'\Gamma_e^{\psi} = S_n, \tag{6}$$

где $V' = dV/d\psi$ и $V$ - объем, заключенный внутри магнитной поверхности $\psi$. Источник частиц определяется как

$$S_n = \left\langle \int d^3u\, S \right\rangle. \tag{7}$$

Здесь и ниже источник учитывается только в уравнениях для моментов и предполагается отсутствующим в линеаризованном уравнении для функции распределения $f_{e1}$ (это возможно, когда характерные времена источников много больше, чем характерные времена столкновительной релаксации). Радиальный поток частиц определен здесь как

$$\Gamma_e^{\psi} = \langle \mathbf{\Gamma}_e \cdot \nabla\psi \rangle = \left\langle \int d^3u\, (\mathbf{V}_{dr}\cdot\nabla\psi) f_{e1} \right\rangle, \tag{8}$$

где $\mathbf{V}_{dr}\cdot\nabla\psi$ есть радиальная (контравариантная) компонента дрейфовой скорости, а $f_{e1}$ является решением релятивистского линеаризованного дрейфово-кинетического уравнения, которое можно получить из (1).

Видно, что и уравнение для плотности (6), и выражение для потока частиц (8) формально совпадают с нерелятивистскими [18,19] с той лишь разницей, что дрейфовая скорость и функция распределения теперь должны быть вычислены в релятивистском приближении. Формально выражение (8) не обладает релятивистской инвариантностью, однако естественное для тороидальной плазмы условие $|V_e^{\psi}|/\langle|\nabla\psi|\rangle \ll c$, где $V_e^{\psi} \equiv \Gamma_e^{\psi}/n_e$ - скорость потока частиц, позволяет легко пренебречь этим нарушением. Это условие выполняется всегда, когда применимо неоклассическое разложение, и лоренцевская инвариантность не играет никакой роли для дальнейшего рассмотрения.

Уравнение баланса энергии также может быть записано в виде, формально совпадающим со стандартным нерелятивистским. Для этого, однако, требуется ввести дополнительную величину. В отличие от классического линейного соотношения между температурой $T_e$ и внутренней энергией $W_e^{(cl)}$, содержащейся в функции распределения Максвелла, $W_e^{(cl)} = \int(m_{e0}v^2/2)f_{eM}d^3v = (3/2)n_eT_e$ (аналогичное определение «температуры» применялось Брагинским [25] для произвольной функций распределения), внутренняя энергия, содержащаяся в релятивистской функции распределения Юттнера-Максвелла, $W_e = \int m_{e0}c^2(\gamma-1)f_{eJM}(u)d^3u$, является сложной функцией температуры. Поэтому удобно ввести величину $T_e^R$, которая определяется из условия $W_e = (3/2)n_eT_e^R$ и является релятивистским аналогом температуры,

$$T_e^R \equiv \frac{2}{3n_e}\int m_{e0}c^2(\gamma-1)f_{eJM}(u)d^3u = \left(1+\frac{2}{3}R\right)T_e. \quad (9)$$

Релятивистская поправка $R$ здесь определена как

$$R(\mu_r) = \mu_r\left(\frac{K_3}{K_2}-1\right)-\frac{5}{2} \simeq \frac{15}{8\mu_r}+\ldots\ (\mu_r \gg 1). \quad (10)$$

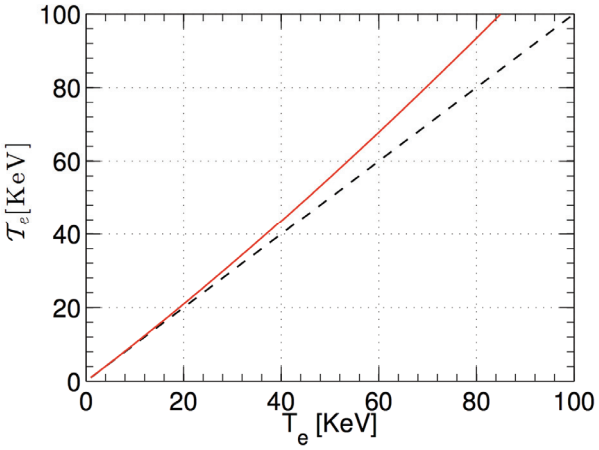



Рисунок. Релятивистский аналог температуры, $T_e^R$, показан как функция температуры $T_e$.

Это определение согласуется с выражением для полной релятивистской энергии (включая энергию покоя), приведенным в [2,26].

На рисунке величина $T_e^R$ представлена как функция температуры. Видно, что в нерелятивистском пределе они совпадают, однако при достаточно больших температурах разница становится существенной. Важно отметить, что при расчете профиля температуры с помощью сформулированного ниже релятивистского уравнения баланса энергии (по аналогии с нерелятивистским уравнением) будет рассчитываться именно величина $T_e^R$, которая даёт завышенное значение по сравнению с реальной температурой.

Интегрируя (1) с весом $m_{e0}c^2(\gamma-1)$ и усредняя по магнитной поверхности, получаем уравнение баланса энергии,

$$\frac{3}{2}\frac{\partial n_e T_e^R}{\partial t}+\frac{1}{V'}\frac{\partial}{\partial\psi}V'Q_e^{\psi} = -P_{ei}-\langle \mathbf{j}_e\cdot\mathbf{E}\rangle + S_E. \quad (11)$$

Отметим, что величина $n_e T_e^R$ здесь не может быть интерпретирована как давление, хотя она играет в релятивистском уравнении баланса энергии ту же роль, что и давление $p_e = n_e T_e$ в соответствующем нерелятивистском уравнении, и в классическом пределе совпадает с ним.

Неоклассический радиальный поток энергии в (11) определен, аналогично (8), как

$$Q_e^{\psi} = \langle \mathbf{Q}_e\cdot\nabla\psi\rangle = \left\langle \int d^3u\, m_{e0}c^2(\gamma-1)(\mathbf{V}_{dr}\cdot\nabla\psi)f_{e1}\right\rangle. \quad (12)$$

Первый член в правой части (11), $P_{ei}$, описывает скорость обмена энергией между релятивистскими электронами и ионами, где каждая компонента плазмы имеет своё распределение Максвелла со своими плотностью и температурой,

$$P_{ei} = -\int m_{e0}c^2(\gamma-1)C_{ei}[f_{eJM}, f_{iM}]d^3u. \quad (13)$$

Подставляя в (13) релятивистский кулоновский оператор столкновений [17] и принимая во внимание, что $m_i >> m_{e0}$, можно получить выражение для скорости энергообмена в следующей форме:

$$P_{ei} \simeq P_{ei}^{(cl)}C_{JM}(\mu_r)\left(1+\frac{2}{\mu_r}+\frac{2}{\mu_r^2}\right), \quad (14)$$

где $P_{ei}^{(cl)} = (4/\pi^{1/2})\nu_{e0}(m_{e0}/m_i)n_i Z_i^2(T_e - T_i)$ – стандартное нерелятивистское выражение для скорости обмена энергией электронов с ионами за счет кулоновского взаимодействия, и $\nu_{e0} = 4\pi n_e e^4 \ln\Lambda/(m_{e0}^2 u_{th}^3)$, где $\ln\Lambda$ - кулоновский логарифм. Релятивистские поправки в (14) сгруппированы в отдельный фактор, который в нерелятивистском пределе, $c\to\infty$, стремится к единице.

Второй член, $\langle \mathbf{j}_e\cdot\mathbf{E}\rangle$, описывает как работу радиального электрического поля, $E_\psi = -\partial\Phi/\partial\psi$, над радиальным потоком частиц, возникающим при поперечном дрейфе в неоднородном магнитном поле, так и джоулевский нагрев электронов внешним продольным индуктивным электрическим полем, $E_\parallel$. Здесь ток электронов может быть записан как

$$\mathbf{j} = -e\Gamma_e = -e\Gamma_e^{\psi}\nabla\psi + \frac{\langle j_\parallel B\rangle}{\langle B^2\rangle}\mathbf{B}. \quad (15)$$

Продольный ток,

$$\langle j_\parallel B\rangle = -e\left\langle B\int d^3u\frac{u\xi}{\gamma}f_{e1}\right\rangle, \quad (16)$$

который представляет собой реакцию плазмы на продольное электрическое поле, $\langle E_\parallel B\rangle$, может быть вычислен при помощи самосопряженности оператора столкновений (“adjoint approach”), если известно решение задачи

Спитцера [27] (это отдельная проблема и она не обсуждается в этой статье; предполагается лишь, что решение релятивистской задачи Спитцера известно).

Третий (последний) член в правой части (11), $S_E$, описывает все источники и стоки энергии (к примеру, ВЧ-нагрев, а также потери энергии на тормозное излучение при *e/e* и *e/i* столкновениях):

$$S_E = \left\langle \int d^3u\, m_{e0}c^2(\gamma - 1)S \right\rangle. \tag{17}$$

Удобно также выделить из полного потока энергии $\mathbf{Q}_e$ поток тепла за счёт теплопроводности $\mathbf{q}_e$, отделив его от конвективного потока энергии $\mathbf{I}_e$, непосредственно связанного с потоком частиц: $\mathbf{Q}_e = \mathbf{q}_e + \mathbf{I}_e$. Как и в нерелятивистском приближении, последний состоит из двух частей, представляющих собой поток внутренней энергии ансамбля частиц, $W_e = n_e T_e^R$, и тепла, $n_e T_e$, которые переносятся плазмой, движущейся со скоростью $\mathbf{V}_e = \mathbf{\Gamma}_e / n_e$, т.е. $\mathbf{I}_e = \mathbf{V}_e W_e + T_e \mathbf{\Gamma}_e$. Тогда, в соответствии с (9), получаем

$$Q_e^{\psi} = q_e^{\psi} + \left(\frac{5}{2} + R\right) T_e \Gamma_e, \tag{18}$$

где $q_e^{\psi} = \langle \mathbf{q}_e \cdot \nabla\psi \rangle$. Это определение имеет тот же смысл, что и соответствующее нерелятивистское выражение, но включает релятивистскую поправку $R(\mu_r)$. В нерелятивистском пределе $R \to 0$ и (18) совпадает со стандартным нерелятивистским выражением [18,19]. Важно отметить, что, интерпретируя скорость потока частиц, $\mathbf{V}_e = \mathbf{\Gamma}_e / n_e$, как локальную термодинамическую величину, идентичное выражение для потока тепла можно получить в рамках релятивистской кинетики из 4-тензора энергии-импульса и энтальпии [2].

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В статье предложена формулировка релятивистских уравнений переноса для электронов в горячей неоднородной тороидальной плазме. Главное преимущество предлагаемых уравнений состоит в их формальном сходстве со стандартным нерелятивистским формализмом, что может заметно облегчить учет релятивистских эффектов при расчетах, поскольку их учёт требует лишь относительно небольшой модификации уже существующих транспортных кодов (в то время как релятивистские формулировки, используемые в астрофизике, которые основаны на использовании 4-векторов, не могут без значительной переработки быть напрямую применены в транспортных кодах, написанных изначально для нерелятивистской плазмы).

Предложенная модель основана на тех же физических предположениях, что и стандартная теория столкновительного переноса в тороидальной плазме: 1) термодинамические силы, т.е. градиенты плотности, температуры и электрического потенциала плазмы, индуцируют малое отклонение от термодинамического равновесия, описываемого релятивистской функцией распределения Юттнера-Максвелла, и это отклонение может быть найдено в рамках линейного приближения; 2) соотношения пространственных и временных масштабов в рассматриваемой системе гарантирует применимость дрейфовых уравнений движения (в данном случае релятивистских) в слабо неоднородном магнитном поле.

В то время как уравнение баланса частиц формально совпадает с классическим, уравнения баланса энергии требует особого рассмотрения. Для сохранения формы уравнения потребовалось ввести новую величину, которая определяется через энергию, содержащуюся в релятивиском распределении Юттнера-Максвелла, и по сути является релятивистским аналогом температуры. Разница между этой величиной и собственно температурой довольно мала для сегодняшнего поколения токамаков и стеллараторов, но не является пренебрежимой уже для ИТЕР, рабочие температуры которого будут порядка 25 кэВ (в этом случае $R \approx 0{,}09$ и поправка составит 6%), и становится значительной при температурах порядка 50-70 кэВ, которые ожидаются в будущих безнейтронных реакторах (соответствующие $R \approx 0{,}17$-$0.26$ и поправка составит 11-17%). Предлагаемая модель дает возможность определить верхний предел применимости стандартной теории столкновительного транспорта в тороидальной плазме с точки зрения корректности нерелятивисткого приближения при высоких температурах.

В данной работе не рассматривалась задача решения линеаризованного дрейфово-кинетического уравнения и предполагалось, что линейный отклик плазмы на возмущение, вызванное неоднородностью и тороидальностью, уже известен. Аналитическое решение для него может быть получено только в случае сильных упрощений (например, сильно-столкновительная плазма, в которой тороидальность становится несущественной). Наибольший же интерес представляют как раз те случаи, когда тороидальность является одним из определяющих факторов, и решение линеаризованного релятивистского дрейфово-кинетического уравнения может быть получено лишь численно. Следует отметить также, что условие существенности релятивистских эффектов в плазме соответствует пределу малой столкновительности.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zeldovich Y.B. and Novikov I. Relativistic Astrophysics. – Chicago: University of Chicago Press, 1983.
2. de Groot S. R., van Leewen W. A., van Weert Ch. G. Relativistic Kinetic Theory. – Amsterdam: North-Holland Publishing Company, 1980.
3. TenBarge J.M., Hazeltine R.D., Mahajan S.M. Fluid model for relativistic, magnetized plasmas // Phys. Plasmas. – 2008. – Vol.15. – P.062112.

4. Pino J., Li H., Mahajan S. Relaxed states in relativistic multifluid plasmas // Phys. Plasmas. – 2010. – Vol.17. – P.112112.
5. Kotelnikov I., Rome M. Relativistic thermal equilibrium of non-neutral plasmas // Phys. Lett. A. – 2010. – Vol.374. – P.4864.
6. Honda M., Mima K. Relativistic Effects on Transport Coefficients in Collision Dominant Magnetoactive Plasmas // J. Phys. Soc. Jpn. – 1998. – Vol.67. – P.3420-3428.
7. Robiche J., Rax J.M. Relativistic kinetic theory of pitch angle scattering, slowing down, and energy deposition in a plasma // Phys. Rev. E. – 2004. – Vol.70. – P.046405 [11 pages].
8. Tomabechi K. et. al. ITER conceptual design // Nucl. Fusion. – 1991. – Vol.31. – P.1135.
9. Wagner F. et. al. On the heating mix of ITER // Plasma Phys. Control. Fusion. – 2010. – Vol.52. – P.124033.
10. Giruzzi G. et. al. Advances on modelling of ITER scenarios: physics and computational challenges // Plasma Phys. Control. Fusion. – 2011. – Vol.53. – P.124010.
11. Ward D.J. The physics of DEMO // Plasma Phys. Control. Fusion. – 2010. – Vol.52. – P.124033.
12. Horton L.D. Physics Issues for DEMO // Plasma Phys. Control. Fusion. – 2008. – Vol.52. – P.468.
13. Mantsinen M.J., Salomaa R.R.E. Transients in D-T and D-$^3$He tokamak fusion reactors // Fusion Technol. – 1989. – Vol.33. – P.237.
14. Son S., Fisch N.J. Aneutronic fusion in a degenerate plasma // Phys. Lett. A. – 2004. – Vol.329. – P.76.
15. Stott P.E. The feasibility of using D-$^3$He and D-D fusion fuels // Phys. Control. Fusion. – 2005. – Vol.47. – P.1305.
16. Helander P., Eriksson L.-G., Andersson F. Runaway acceleration during magnetic reconnection in tokamaks // Plasma Phys. Control. Fusion. – 2002. – Vol.44. – P.B247.
17. Braams B.J., Karney C.F.F. Conductivity of a relativistic plasma // Phys. Fluids B. – Vol.1. – 1989. – P.1355-1368.
18. Hinton F.L., Hazeltine R.D. Theory of plasma transport in toroidal confinement systems // Rev. Mod. Phys. – 1976. – Vol.48. – P.239.
19. Helander P., Sigmar D.J. Collisional Transport in Magnetized Plasmas. – Cambridge: Cambridge University Press, 2002.
20. 20. Belyaev S.T., Budker G.I. Relyativistskoe kineticheskoe uravnenie // Doklady Akademii nauk SSSR – 1956. – T.107. – S.807-810.
21. 21. Morozov A.I., Solov'ev L.S. Dvizhenie zaryazhennykh chastits v elektromagnitnykh polyakh // Voprosy teorii plazmy. – 1963. – T.2. – S.177-261.
22. Littlejohn R.G. Linear relativistic gyrokinetic equation // Phys. Fluids. – 1984. – Vol.27. – P.976.
23. Northrop T.G. The Adiabatic Motion of Charged Particles. – New York: Interscience, 1963.
24. Brambilla M. Kinetic Theory of Plasma Waves: Homogeneous Plasmas. – Oxford: Oxford University Press, 1998.
25. Mettens T., Balescu R. Relativistic transport theory for a two-temperature magnetized plasma // Phys. Fluids B. – 1990. – Vol.2. – P.2076.
26. Braginskiy S.I. Yavleniya perenosa v plazme // Voprosy teorii plazmy. – 1963. – T.1. – S.183-272.
27. Marushchenko N.B., Beidler C.D., Maassberg H. Current Drive Calculations with an Advanced Adjoint Approach // Fusion Sci. Technol. – 2009. – Vol.55. – P.180.

*УДК* 539.1.074.8

# ОПЫТНЫЙ ОБРАЗЕЦ НЕЙТРОННОГО СПЕКТРОМЕТРА БОННЕРА АКТИВАЦИОННОГО ТИПА

**А.Ю. Буки, С.А. Каленик, И.Л. Семисалов, И.С. Тимченко, А.С. Задворный, Н.Г. Шевченко, В.И. Касилов, С.П. Гоков, С.С. Кочетов, Г.И. Ледовской, П.Л. Махненко**

*ННЦ "Харьковский физико-технический институт"*
*ул. Академическая 1, г. Харьков, Украина, 61108*
*E-mail: abuki@ukr.net*
Received 4 September 2012, accepted 22 November 2012

Создан опытный образец шарового нейтронного спектрометра Боннера активационного типа, состоящий из 5-ти полиэтиленовых шаров диаметром от 9,0 до 24,5 см. В качестве активируемого материала, находящегося внутри этих шаров, использован индий. Проведено испытание спектрометра на нейтронном излучении конвертора установленного на тридцати-мэвном канале вывода ускорительного комплекса ЛУЭ-300. В результате математической обработки данных измерений наведенной в индии радиоактивности восстановлен спектра нейтронов. Полученный в этом эксперименте спектр имеет вид, близкий к известному спектру нейтронов из γ,n-реакции на тяжёлых ядрах, которая и продуцирует нейтроны в конверторе ускорителя. Найдены границы рабочего диапазона энергий спектрометра и рассматривается возможность их расширения. Обсуждаются вопросы эффективности, чувствительности и условий применения спектрометра. Полученный в настоящей работе опыт будет использован для оптимизации конструкции рабочего варианта спектрометра.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** спектрометр нейтронов, нейтронные поля, математическое моделирование, наведенная радиоактивность, детектирование гамма-излучения

## THE PROTOTIPE OF BONNER NEUTRON SPECTROMETER OF ACTIVATION TYPE

**A.Yu. Buki, S.A. Kalenik, I.L. Semisalov, I.S. Timchenko, A.S. Zadvorny, M.G. Shevchenko, V.J. Kasilov, S.P. Gokov, S.S. Kochetov, G.I. Ledovskoy, P.L. Makhnenko**

*NSC "Kharkov Institute of Physics and Technology"*
*1, Akademicheskaya st., Kharkov, Ukraine, 61108*

The prototype of Bonner sphere neutron spectrometer of activation type has been created. It is composed of 5-polyethylene spheres with a diameter from 9.0 to 24.5 cm. Indium as activated material inside these spheres is used. We tested the neutron spectrometer, using neutron radiation from converter which was installed at the thirty-MeV output channel of the accelerator complex LINAC-300. As a result of mathematical processing of the measurement data of the induced radioactivity in indium, neutron spectrum was restored. The spectrum, which obtained in this experiment, is similar to the well-known neutron spectrum from the γ, n-reaction with heavy nuclei, which produces neutrons in converter of the accelerator. Energy range of spectrometer was determined and we consider possibility of its expansion. An issue of efficiency, sensitivity and use conditions of the spectrometer is being discussed. The experience, obtained in this work, will be used to optimize the design of a working version of the spectrometer.
KEY WORDS: neutron spectrometer, neutron fields, simulation, induced radioactivity, gamma-radiation detection

## ДОСЛІДНИЦЬКИЙ ЗРАЗОК НЕЙТРОННОГО СПЕКТРОМЕТРУ БОНЕРА АКТИВАЦІЙНОГО ТИПУ

**О.Ю. Буки, С.О. Каленик, І.Л. Семисалов, І.С. Тімченко, А.С. Задворний, М.Г. Шевченко, В.Й. Касілов, С.П. Гоков, С.С. Кочетов, Г.І. Лєдовской, П.Л. Махненко**

*ННЦ "Харківський фізико-технічний інститут"*
*вул. Академічна 1, м. Харків, Україна, 61108*

Створено дослідницький зразок кульового нейтронного спектрометра Боннера активаційного типа, що складається з 5-ти поліетиленових куль діаметром від 9,0 до 24,5 см. У якості матеріалу, що активується усередині цих куль, використано індій. Проведено випробування спектрометра на нейтронному випромінюванні конвертора який встановлювався на тридцяти-мевному каналі виводу прискорювального комплексу ЛПЕ-300. В результаті математичної обробки даних вимірів наведеної в індії радіоактивності отримано спектр нейтронів. Цей експериментальний спектр має вигляд, близький до відомого спектру нейтронів з γ,n-реакції на важких ядрах, яка і продукує нейтрони в конверторі прискорювача. Знайдено межі робочого діапазону енергій спектрометра і розглядається можливість їх розширення. Також обговорюються питання ефективності, чутливості і умов застосування спектрометра. Отриманий у цій роботі досвід буде використано для оптимізації конструкції робочого варіанту спектрометра.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА**: спектрометр нейтронів, нейтронні поля, математичне моделювання, наведена радіоактивність, детектування гамма-випромінювання

Создан опытный образец нейтронного спектрометра Боннера активационного типа (НСБ-А). Прибор является модификацией предложенного в работе [1] спектрометра, а его отличие от последнего состоит в способе регистрации нейтронов. В первоначальной конструкции спектрометра Боннера нейтрон регистрируется в результате ядерной реакции с выходом заряженной частицы (например, $n + {}^{10}B \Rightarrow {}^{7}Li + \alpha + 2{,}79$ МэВ), которая вызывает в сцинтилляторе световую вспышку, регистрируемую ФЭУ (спектрометр сцинтилляционного типа). В активационном спектрометре нейтроны поглощаются расположенной внутри шара таблеткой, образуя

© Buki A.Yu., Kalenik S.A., Semisalov I.L., Timchenko I.S., Zadvorny A.S., Shevchenko M.G., Kasilov V.J., Gokov S.P., Kochetov S.S., Ledovskoy G.I., Makhnenko P.L., 2012

в ней радиоактивный изотоп. Последующее измерение радиоактивности таблетки показывает количество попавших на неё нейтронов. Основное преимущество НСБ-А состоит в возможности его применения в мощных нейтронных полях, тогда как применение спектрометра сцинтилляционного типа ограничено скоростью срабатывания электроники и её радиационной стойкостью. В качестве примера использования НСБ-А можно привести работы [2] и [3], в которых с помощью таких приборов проводились измерения нейтронных полей в экспериментальных залах ускорителей частиц.

Целью работы является создание и испытание 5-ти шарового НСБ-А для получения практического опыта его эксплуатации. Этот опыт необходим для конструирования рабочего варианта НСБ-А.

## КОНСТРУКЦИЯ НЕЙТРОННОГО СПЕКТРОМЕТРА И МЕТОДИКА АНАЛИЗА ДАННЫХ

Рассматриваемый спектрометр состоит из 5-ти полиэтиленовых шаров различного диаметра от 9,0 до 24,5 см (рис.1). В центре каждого шара находится таблетка, состоящая из индия. У изотопа $^{115}$In (его содержание в естественном индии 95,7%) высокое сечение поглощения тепловых нейтронов – 190 барн. В результате поглощения нейтрона ядром $^{115}$In образуется изомер $^{116m}$In ($T_{1/2}$= 54,3 мин.), $\beta^-$-распад которого сопровождается излучением гамма-квантов с энергией 416,9 КэВ [4]. Индиевые таблетки имеют форму цилиндра высотой 0,2 см и диаметром 0,4 см. Эти размеры выбраны так, чтобы (80 ÷ 90)% падающих на таблетку тепловых нейтронов поглощалось, а поглощение в ней гамма-квантов распада было невелико.

После экспозиции спектрометра в потоке нейтронов измеряется интенсивность излучения каждой таблеткой гамма-квантов с энергией 416,9 КэВ. Эти измерения проводятся с помощью германий-литиевого детектора, энергетическое разрешение которого в районе 400 КэВ равно 2,5 КэВ, и эффективность регистрации гамма-квантов 0,017 (при расстоянии между таблеткой и передней поверхностью кристалла 5 см). Затем, с помощью уравнения активации, из данных этих измерений определяется число радиоактивных ядер, образовавшихся в каждой таблетке во время облучения нейтронами.

Вероятность замедления нейтрона до энергии активации таблетки зависит от его начальной энергии и объёма шара, а количество попавших в шар нейтронов – от площади его поперечного сечения. Таким образом, зависимость активации таблетки от начальной энергии налетающих на шар нейтронов можно представить в виде функции отклика

$$F_i(E_j) = \frac{N_i(E_t)}{N_i(E_j)} S_i \,, \qquad (1)$$

где отношение $N_i(E_t)/N_i(E_j)$ – вероятность активации таблетки нейтроном; $N_i(E_j)$ – количество нейтронов, налетевших на $i$-тый шар с начальной энергией $E_j$ и $N_i(E_t)$ – количество нейтронов, которые замедлились до энергии активации $E_t$, и попали в таблетку; $S_i$ – площадь поперечного сечения $i$-того шара.




Рис. 1. Шары нейтронного спектрометра.

Зная активацию таблеток в каждом из шаров и располагая функциями отклика этих шаров можно восстановить спектр нейтронов исследуемого потока. Необходимые для этого функции отклика рассчитаны (рис.2) с помощью разработанных нами программ, моделирующих распространение нейтронов в веществе [5,6].

Существует несколько методик восстановления спектра (см., например, монографию [7]). В настоящей

работе применяется полуэмпирическая методика, обычно используемая в анализе данных полученных на спектрометре Боннера. Эта методика состоит в следующем:

- предполагается модель формы нейтронного спектра в виде некоторой функции $\Phi_m(E, a_k)$, в которой содержится $P$ свободных параметров $a_k$.
- записывается сумма

$$N_{i,m}(a_k) = \sum_j \Phi_m(E_j, a_k) F_i(E_j) \Delta E_j \quad , \tag{2}$$

которая представляет собой расчёт количества активированных ядер в таблетке $i$-того шара, в том случае, если бы спектр нейтронов описывался функций $\Phi_m(E,a_k)$ с параметрами $a_k$.

- составив для $I$ шаров спектрометра уравнения вида (2), и используя экспериментальные данные по активации таблеток $N_{i,act} \pm \Delta N_{i,act}$, запишем функцию хи-квадрата

$$\chi^2_m(a_k) = \frac{1}{I-P} \sum_i^I \left[ \frac{N_{i,act} - N_{i,m}(a_k)}{\Delta N_{i,act}} \right]^2 . \tag{3}$$

Варьируя параметры $a_k$, минимизируем функцию хи-квадрата и находим значения $a_k$, которые для данной функции спектра $\Phi_m(E,a_k)$ соответствуют расчёту величин $N_{i,m}(a_k)$ наиболее близких к экспериментальным значениям $N_{i,act}$. Если рассматривается несколько различных функций $\Phi_m(E,a_k)$, то та из них, которой соответствует меньшее значение $\chi^2$, лучше других очерчивает спектр.

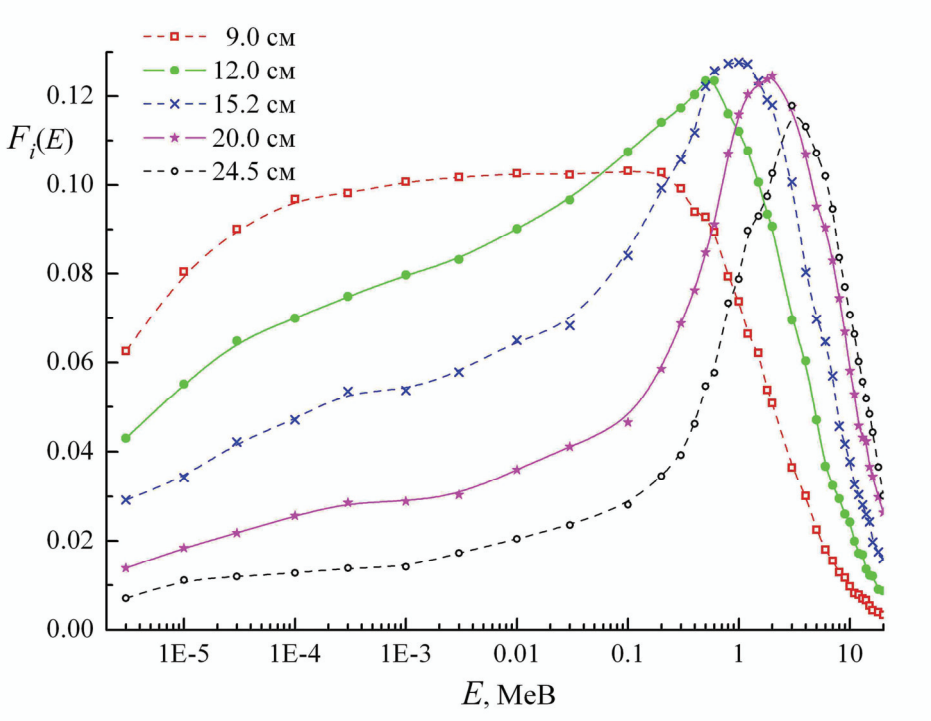



Рис.2. Функции отклика $F_i(E)$ шаров нейтронного спектрометра.

## ЭКСПЕРИМЕНТ

Проверка работы спектрометра состоит в измерении на нём нейтронного излучения, спектр которого известен. Так как у этого спектрометра эффективность регистрации нейтронов порядка $10^{-5}$, а время облучения шаров обычно ограничено двумя периодами полураспада $^{116m}$In (т.е. в пределах 2 часов), то тестирующий источник нейтронов должен быть достаточно интенсивным. Этим требованиям соответствуют нейтроны из γ,n-реакции в конверторе ускорителя электронов. А именно:

а) спектр нейтронов из γ,n-реакции на тяжёлых ядрах имеет форму асимметричного пика с максимумом ~ 0,5 МэВ и средневзвешенной энергией ~ 1 МэВ;

б) конвертор ускорителя электронов генерирует около $10^{12}$ n/сек на киловатт мощности пучка, что на расстоянии 100 см от источника даёт поток плотностью $p = 10^7$ n/(сек см$^2$).

Следуя изложенным аргументам, проверка спектрометра была проведена на потоке нейтронов из конвертора, установленного на тридцати-мэвном канале вывода ускорительного комплекса ЛУЭ-300.

Электроны с энергией 12 МэВ падают из ускорителя на конвертор. Конвертор состоит из нескольких танталовых и расположенных за ними по направлению пучка свинцовых пластин. Суммарная толщина тантала

0,8 см (2 рад. длины), свинца – 3 см. (6 рад. длин). В танталовых пластинах электронный пучок порождает тормозные фотоны, которые в этих пластинах и в пластинах свинца генерируют нейтроны. Шары нейтронного спектрометра устанавливаются так, что на них попадают нейтроны, излучаемые конвертором под углом 90° к пучку электронов (рис.3.). Чтобы на результаты измерений меньше влияли нейтроны, которые рассеялись на соседних шарах, расстояние между центрами ближайших друг к другу шаров было не менее удвоенной суммы их радиусов. Для учёта фона от тепловых нейтронов, которые в таких экспериментах обычно аккумулируется в районе выхода пучка, в экспозиции кроме таблеток внутри шаров облучались «голые» индиевые таблетки, т.е. таблетки без замедлителя нейтронов. После облучения таблетки как «голые», так и извлечённые из полиэтиленовых шаров по одной помещались в детектор. Из измерений детектором количества гамма-квантов, которые излучают таблетки, определялась их активация за время экспозиции в потоке нейтронов – таблица 1.

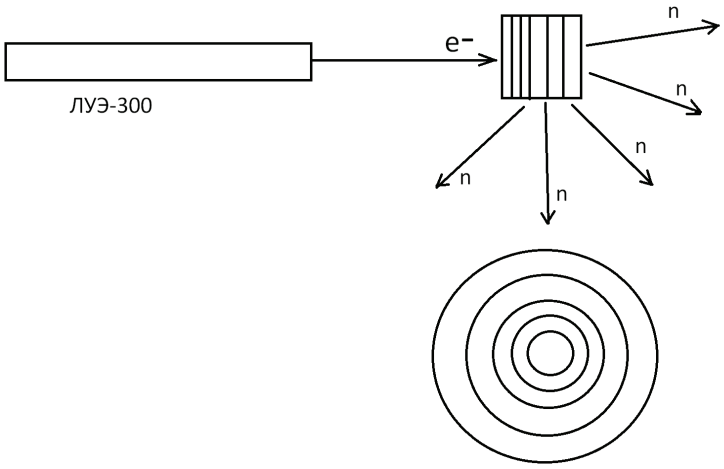



Рис.3. Схема эксперимента (вид сверху).

Таблица 1.

Количество активированных ядер $N_{i,act}$ в таблетке шара номер $i$ и погрешность этой величины $\Delta N_{i,act}$. Количество ядер активированных фоновыми нейтронами $N_{bg}$.

| $i$ | Диаметр, см | $N_{i,act} + N_{bg}$ | $N_{i,act}$ | $\Delta N_{i,act}$ |
|---|---|---|---|---|
| 1 | 9,0 | $79 \cdot 10^3$ | $62 \cdot 10^3$ | $2{,}0 \cdot 10^3$ |
| 2 | 12,0 | $89 \cdot 10^3$ | $75 \cdot 10^3$ | $2{,}2 \cdot 10^3$ |
| 3 | 15,2 | $115 \cdot 10^3$ | $107 \cdot 10^3$ | $2{,}6 \cdot 10^3$ |
| 4 | 20,0 | $93 \cdot 10^3$ | $88 \cdot 10^3$ | $3{,}2 \cdot 10^3$ |
| 5 | 24,5 | $68 \cdot 10^3$ | $65 \cdot 10^3$ | $3{,}6 \cdot 10^3$ |

Из таблицы 1 видно, что максимальное количество активированных ядер находится в таблетке шара номер 3. Функции отклика на рис.2 показывают, что такой случай возможен, только если средневзвешенные энергии нейтронов находятся в интервале 0.5 ÷ 1,5 МэВ. Более детальную информацию о спектре нейтронов можно получить с помощью изложенной выше методики восстановления спектра.

Для применения этой методики необходимо задать функцию, описывающую предполагаемый вид спектра. В качестве таких функций рассматривается гауссоида – $\Phi_G(E,a_k)$ и функция типа распределения Максвелла – $\Phi_M(E,a_k)$. Их вид соответственно

$$\Phi_G(E,a_k) = a_1 \exp - \left( \frac{E - a_2}{a_3} \right)^2, \tag{4а}$$

$$\Phi_M(E,a_k) = b_1 E^{b_3} \exp\left(-b_2 E\right). \tag{4б}$$

После подстановки в ур.(2) функции (4а) или (4б) и функций отклика показанных на рис.2, получаем явный вид величины $N_{i,m}(a_k)$. Затем, используя эту величину и данные $N_{i,act} \pm \Delta N_{i,act}$ из таб.1, находим функцию хи-квадрата определяемую ур.(3). Минимизация хи-квадрата проводится с помощью вычислительной программы ROOT 5.32.03 [8]. В случае использования функции (4а) параметр $a_2$ определяет положение максимума этой

функции. Если же в ур.(2) подставляется функция (4б), то её максимум определяется как $E_{max} = b_3/b_2$. Средневзвешенная энергия этих функций $E_{m\,a}$ находится из их численного интегрирования (погрешность этой величины не приводится). Величины, полученные из данных от 5-ти шаров, показаны в первой строке таблицы 2, а их графический вид на рис. 4. В таблице 2 так же приводятся результаты подгонки рассматриваемых функций к данным от 4-х шаров: вторая строка без измерений самого маленького шара (2÷5), третья строка без измерений самого большого шара (1÷4).

Таблица 2.

Результаты подгонки функций (4а) и (4б) к данным таблицы 1 в случае использования данных всех шаров – первая строка, и данных от четырёх шаров: без самого меньшего из шаров – вторая строка и без самого большего из шаров – третья строка. $E_{max}$ и $E_{m\,a}$ – энергия максимума функций спектра и их средневзвешенная энергия, соответственно.

| | Функция (4а) | | | Функция (4б) | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| $I$ | $\chi_i^2(a_k)$ | $E_{max} = a_2$ | $E_{m\,a}$ | $\chi_i^2(b_k)$ | $E_{max} = b_3/b_2$ | $E_{m\,a}$ |
| 1÷5 | 12,5 | 0,91±0,45 | 1,02 | 12,3 | 0,67±0,46 | 0,95 |
| 2÷5 | 7,3 | 0,78±0,02 | 0,78 | 15,4 | 0,71±0,09 | 0,82 |
| 1÷4 | 25,1 | 0,00±10,4 | 0,93 | 24,5 | 0,58±0,53 | 0,93 |

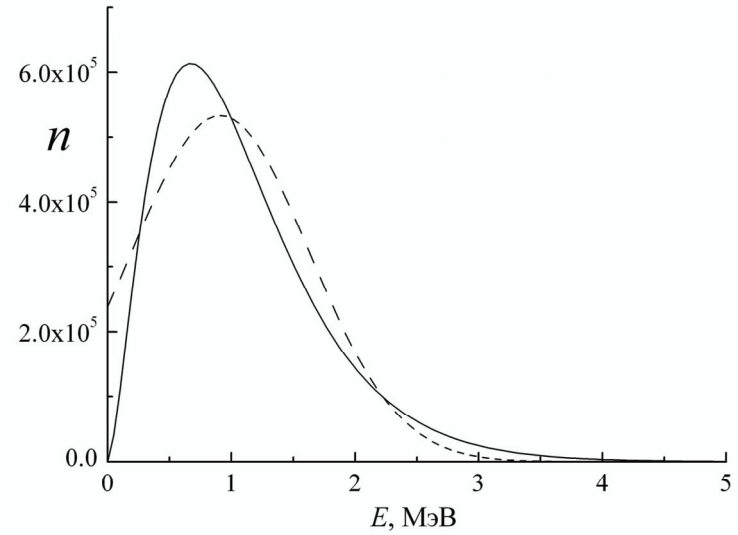



Рис.4. Восстановленный спектр нейтронов.
Штриховая линия – с использованием функции (4а), сплошная линия – функции (4б).

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ИСПЫТАНИЯ СПЕКТРОМЕТРА И ОЦЕНКА ЕГО ХАРАКТЕРИСТИК

Прежде всего, следует отметить, что как видно из таблицы 2, подгонка функций (4а) и (4б) к полному набору шаров (1÷5) приводит к распределениям, положения максимумов которых по энергии и значения средневзвешенной энергии оказались близкими к ожидаемым (около 0,5 и 1 МэВ соответственно).

Тем не менее, сравнение результатов подгонок функций (4а) и (4б) показывает, что как по $\chi_i^2$ так и по средневзвешенной энергии данная конструкция спектрометра в условиях описанных измерений не может по данным пяти шаров отличить симметричный пик гауссиана (4а) от существенно асимметричного пика функции (4б)[1/]. В связи с этим отметим, что, кроме асимметрии, эти функции различаются ещё и областью определения. Так,

– функция (4а) продолжается в область отрицательных энергий (рис.4), может как угодно далеко смещаться в эту область и даже иметь там максимум[2/], тогда как

– функция (4б) не существует в области отрицательных энергий, так как содержит множитель $E^{b3}$ с не целым показателем степени $b_3$.

[1/] Согласно работе [3] функции (4б), хорошо описывает выход нейтронов в γ,n-реакции на тяжёлых ядрах.

[2/] При использовании для описания спектра функции (4а) следует оговаривать, что в этом случае рассматривается только та её часть, которая при энергиях больше нуля.

Ввиду указанного различия рассматриваемых функций, максимум функции (4б) может быть только при $E > 0$, а в случае функции (4а) этот максимум в области энергий реального спектра ($E > 0$) может отсутствовать. Известно, что спектр эмиссии нейтронов из ядра должен иметь максимум. Это следует не только из работы [3], но и из физики гигантского дипольного резонанса ядра, частным случаем разрядки которого является некумулятивное излучение нейтронов.

Из вышеизложенного следует, что функция (4а) в отличие от (4б) не всегда может описать спектр нейтронов даже на качественном уровне. По-видимому, это и объясняет то, что в случае использования данных от 4-ёх шаров (таблица 2) функция (4а) даёт больший разброс характеристик спектра, чем функция (4б), а при наборе шаров 1÷4 положение максимума имеет погрешность на порядок больше ширины пика.

Приведенный анализ результатов восстановления спектра нейтронов указывает на невысокое энергетическое разрешение спектрометра в области энергий измеряемого спектра. По-видимому, это может быть следствием малого количества использованных в спектрометре шаров или/и неоптимального выбора их диаметров для работы в этом диапазоне энергий. Создание описанного прибора, практическая работа с ним и анализ результатов его использования – необходимый этап для оптимизации его конструкции, методики применения и определения пределов его характеристик. В конечном итоге это опыт, который необходимо иметь для успешного построения рабочего варианта нейтронного спектрометра. Ниже кратко излагаются несколько вопросов, понимание которых необходимо в будущей работе по созданию оптимизированного нейтронного спектрометра.

### Рабочий диапазон энергий спектрометра

Как можно видеть на рис. 2 при $E < 10^{-4}$ МэВ и $E > 5$ МэВ функции отклика практически подобны между собой, т.е. отличаются друг от друга на множитель. В диапазоне $E = 10^{-4} \div 5 \cdot 10^{-2}$ МэВ подобны 4 функции из 5-ти. Не трудно показать, что если в каком-то диапазоне энергий функции отклика различных шаров подобны, то при этих энергиях невозможно измерение спектра. Таким образом, функции отклика имеющихся шаров, показывают, что рабочий диапазон энергий этого спектрометра 0.05 ÷ 5 МэВ.

На рис. 5 приведен расчёт функций отклика для нескольких шаров с диаметрами меньше 12 см и одного шара диаметром 30 см. Поведение этих функций отклика показывает, что если использовать несколько таких дополнительных шаров, то станут возможны измерения спектров нейтронов в диапазоне энергий от $\sim 3 \cdot 10^{-5}$ до 10 МэВ.

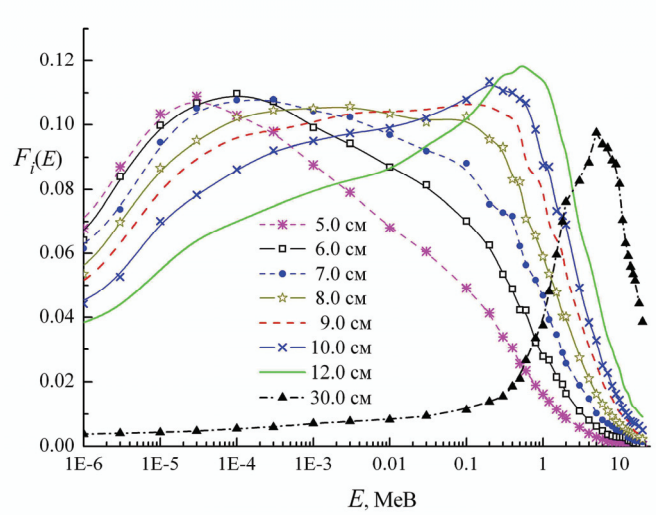



Рис.5. Функции отклика $F_i(E)$ дополнительных шаров нейтронного спектрометра.
Функции отклика дополнительных шаров обозначены линиями с расположенными на них различными значками, а функции отклика шаров используемые в настоящей работе – линиями без значков.

### Эффективность нейтронного спектрометра

Эффективность нейтронного спектрометра $\eta$ это отношение количеств зарегистрированных им нейтронов к попавшим на него. Численное определение этой характеристики необходимо для оценки минимальной плотности потока нейтронов, спектр которого может восстановить спектрометр.

Нейтронный спектрометр состоит из нескольких различных шаров, каждый из которых может рассматриваться как детектор со своей эффективностью и со своей зависимостью этой эффективности от энергии налетающего нейтрона $\eta_i(E)$. Зависимость величин $\eta_i(E)$ от энергии и от номера шара $i$ полностью отражают функции отклика $F_i(E)$. Различие функций $F_i(E)$ и $\eta_i(E)$ в том, что первая показывает вероятность для налетевших на $i$-тый шар нейтронов активировать таблетку этого шара, а вторая – вероятность для этих нейтронов быть зарегистрированным с помощью гамма-детектора. Эти две функции отличает множитель $\eta_\Sigma$,

который не зависит от энергии нейтронов и номера шара, то есть $\eta_i(E) = \eta_\Sigma F_i(E)$. Величина $\eta_\Sigma$ является отношением зарегистрированных гамма-детектором распадов ядер к количеству радиоактивных ядер, образовавшихся в таблетке под действием нейтронного облучения. Эта величина является произведением коэффициентов, каждый из которых связан с определенным промежуточным процессом или операцией.

Определим эти коэффициенты, и приведём их значения для случая нашего спектрометра.

а) В течение времени облучения шара в таблетке происходит как наработка радиоактивных ядер, так и распад некоторого их количества. На момент прекращения облучения $t_f$ количество радиоактивных ядер становиться меньше, чем образовалось, на коэффициент

$$\eta_f = \frac{1}{t_f/\tau}\left[1 - \exp\left(-\frac{t_f}{\tau}\right)\right], \qquad (5)$$

где $\tau$ – время жизни радиоактивного нуклида равное $T_{1/2}/\ln 2$. Примем время облучения $t_f$ = 90 мин и, соответственно уравнению (5), $\eta_f = 0{,}59$.

б) Из всех ядер $^{115}$In, поглотивших нейтрон, 27% [4] распадаются, излучая гамма-квант с энергией 416,9 КэВ, которые и регистрируется детектором. Учитывая то, что в природном индии содержание изотопа $^{115}$In составляет 95,7%, соответствующий коэффициент $\eta_{dg} = 0{,}26$.

в) С момента $t_f$ до начала измерения гамма-излучения таблеток проходит время $t_{tr}$. Соответствующий коэффициент $\eta_{tr} = \exp(-t_{tr}/\tau)$. Для $t_{tr}$= 40 мин. значение $\eta_{tr}$=0,60.

г) Эффективность используемого в эксперименте гамма-детектора $\eta_{gd}$. В нашем случае при энергии $E_\gamma \approx 400$ КэВ $\eta_{gd} = 0{,}017$.

д) Определение спектра является результатом измерений радиоактивности таблеток всех шаров, поэтому появляется коэффициент эффективности $\eta_g$ связанный с методикой измерений на гамма-детекторе. Рассмотрение вариантов этих методик показывает, что максимальное значение $\eta_g = 0{,}16$.

В результате, для рассматриваемого спектрометра коэффициент $\eta_\Sigma = \eta_f\ \eta_{dg}\ \eta_{tr}\ \eta_{gd}\ \eta_{gd} = 2{,}5\cdot10^{-4}$.

Если обратиться к функциям отклика на рис. 2, то можно видеть, что в рабочем диапазоне энергий их значения находятся в интервале 0,02 ÷ 0,13. Отсюда эффективность спектрометра $\eta = (0{,}5\div3{,}3)\cdot10^{-5}$ см$^2$. Полученный коэффициент эффективности является приведенным к падению 1 нейтрона на 1 см$^2$ поперечного сечения шара (см. определение $F_i(E)$ ур.(1)).

Используем полученное значение $\eta$ для грубой оценки минимальной плотности потока нейтронов $n$, которую может измерять спектрометр. Допустим, что для измерения спектра близкого по форме к горизонтальной линии (плотность потока нейтронов одинакова при всех энергиях) нам необходимо зарегистрировать с помощью каждого из шаров не менее $N$ нейтронов (фоновые счёты не учитываются). Как отмечено выше время экспозиции в потоке нейтронов $t_f$. Отсюда минимальный поток нейтронов

$$\min(p) = \frac{N}{\eta\, t_f}. \qquad (6)$$

Пусть $N$=$10^2$, $\eta = 0{,}5\cdot10^{-5}$ см$^2$, $t_f$ = 90 мин = $0{,}54\cdot10^4$ сек.
Тогда, согласно уравнению (6), $\min(p) = 4\cdot10^3$ (см$^2$ сек)$^{-1}$.

**Особенности использования индия в качестве активируемого элемента**

а) У гамма-детектора используемого в измерениях настоящей работы энергетическое разрешение в районе 400 KeV составляет 2,5 KeV. Гамма-облучение индия не приводит к образованию, каких либо радиоактивных ядер, распад которых сопровождается излучением гамма-квантов с энергией 417±3 KeV. Следовательно, рассматриваемый нейтронный спектрометр совершенно не чувствителен к фоновому гамма-излучению.

б) Благодаря тому, что время полураспада активированного индия около одного часа, индиевые таблетки могут использоваться снова спустя 12 часов после облучения, так как за это время их радиоактивность спадёт на 4 порядка.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

Создан опытный образец 5-ти шарового нейтронного спектрометра активационного типа и проведены его испытания в потоке нейтронов из конвертора установленного на линейном ускорителе электронов. Полученный из γ,n-реакции спектр нейтронов по положению максимума близок к ожидаемому, но это положение найдено со значительной погрешностью. Определён рабочий диапазон энергий спектрометра – 0,05÷5 MeV и сделан вывод, что при использовании нескольких дополнительных шаров этот диапазон может быть расширен до ~$3\cdot10^{-5}$÷10 MeV. Для различных шаров спектрометра найдены значения эффективности регистрации нейтронов. Исходя из этого, оценена минимальная плотность потока нейтронов, которую может измерять спектрометр. Показано, что при использовании гамма-детектора спектрометр совершенно не чувствителен к фоновому гамма-излучению.

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Blamblett R.L., Ewing R.J., Bonner T.W. A new type of neutron spectrometer // Nuclear instrument and methods. – 1960. - Vol.9. - P.1-12.
2. Fernández F., Amgarou K., Domingo C. et al. Neutron spectrometry in a PAT cyclotron with a Bonner sphere system // Radiation Protection Dosimetry. – 2007. - Vol.126, №.1-4. - P.371-375.
3. Sannikov A.V., Peleshko V.N., Savitskaya E.N. i dr. Mnogosharovyy spektrometr neytronov na osnove seriynogo pribora RSU-01 // ANRI. - 2009, №1. - C.62-69.
4. nucleardata.nuclear.lu.se/nucleardata/toi/
5. Buki A.Yu., Kalenik S.A., Shapoval I.M. Simplified transportation model of thermal neutrons through matter // PAST. - 2011, №3(55). - P.50-53.
6. Buki A.Yu., Kalenik S.A. Prostaya model' transporta neytronov i eye primenenie dlya raschyeta funktsiy otklika sharovogo neytronnogo spektrometra // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. - 2012- №991– Iss.1(53). - S.23-27.
7. Dreyzin V.E., Emel'yanov S.G., Grimov A.A. Spektrometricheskie izmereniya neytronnogo izlucheniya. – Kursk: Yugo-Zap. gos. un-t., 2011. - 316 s.
8. Brun R., Rademakers F. ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework // Nucl. Inst. & Meth. in Phys. Res. A. – 1997. - Vol. 389. - P. 81-86.

УДК 533. 915

# ЗАЖИГАНИЕ И РЕЖИМЫ ГОРЕНИЯ РАЗРЯДА ПОСТОЯННОГО ТОКА С ПОЛЫМ КАТОДОМ

**В.А. Лисовский[1,2], И.А. Богодельный[1]**
[1] *Харьковский национальный університет имени В.Н. Каразина*
*61022, Харьков, пл. Свободы 4, Украина*
[2] *Научный физико-технологический центр*
*61022 Харьков, пл. Свободы 6, Украина*
*E-mail: lisovskiy@yahoo.com*
Received 15 October 2012, accepted 12 November 2012

В данной работе были измерены кривые зажигания тлеющего разряда постоянного тока с полым и плоским катодами. Показано, что при низких давлениях ($p \le 0{,}05$ Торр) газа совпадают левые ветви кривых зажигания для полого катода и для плоских электродов. При высоких давлениях ($p \ge 0{,}3$ Торр) газа правая ветвь кривой зажигания разряда с полым катодом близка к кривой зажигания для расстояния между плоскими электродами, равному зазору между краем пластин полого катода и плоским анодом. Измерены вольт-амперные характеристики разряда с полым катодом. Показано, что при низких давлениях $p < 0{,}1$ Торр газа разряд горит в высоковольтной (электронно-лучевой) форме с растущей вольт-амперной характеристикой, когда вторичные электроны ускоряются вдоль силовых линий электрического поля и формируют электронный пучок. При давлениях газа $p \ge 0{,}1$ Торр разряд при низких токах горит в тлеющем режиме, в котором в полости между пластинами катода разрядное свечение практически отсутствует, а вольт-амперная характеристика разряда является растущей. При более высоких значениях тока разряд переходит в режим полого катода, заполняя пространство между пластинами, и имеет практически вертикальную вольт-амперную характеристику. Переход разряда из тлеющего режима в полый имеет гистерезисный характер. При давлениях газа $p \sim 1$ Торр эффект полого катода исчезает, так как толщина катодного слоя становится малой по сравнению с зазором между пластинами катода. Показано, что когда коллекторы на аноде располагаются поперек зазора между пластинами полого катода, радиальный профиль электронного тока на анод в режиме электронного луча имеет резко выраженный максимум в области оси разрядной камеры. Профиль является более плоским, если цепочка коллекторов на аноде направлена вдоль полости катода. Повышение давления газа приводит к сильному рассеянию электронов пучка, при этом радиальные профили электронного тока на анод становятся примерно одинаковыми в обоих поперечных направлениях как в тлеющем, так и в полом режимах.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** тлеющий разряд постоянного тока, полый катод, зажигание разряда, вольт-амперные характеристики, радиальная структура, режимы горения

## IGNITION AND BURNING MODES OF DC HOLLOW CATHODE DISCHARGE

**V.A. Lisovskiy[1,2], I.A. Bogodielnyi[1]**
[1] *Kharkov National University*
*Svobody Sq.4, Kharkov 61022, Ukraine*
[2] *Scientific Center of Physical Technologies*
*Svobody Sq.6, Kharkov 61022, Ukraine*

In this paper, we measured the breakdown curves of a dc glow discharge with hollow cathode and flat electrodes. It is shown that at low gas pressure ($p \le 0.05$ Torr), the left branches of the breakdown curves for the hollow cathode and the flat electrodes are identical. At high gas pressures ($p \ge 0.3$ Torr), the right branch of the breakdown curve of the discharge with a hollow cathode is close to the breakdown curve for the distance between the plane electrodes, equal to the gap between the edge of the plates of the hollow cathode and flat anode. Current-voltage characteristics of the hollow cathode discharge were measured. It is shown that with low gas pressure $p < 0.1$ Torr discharge is in the high-voltage (electron beam) form with ascending current-voltage characteristic, when secondary electrons are accelerated along electric field lines and form an electron beam. In the gas pressure range $p \ge 0.1$ Torr the discharge at low current burns in the glow mode, in which the discharge glow is practically absent in the cavity between the plates of the cathode, and the current-voltage characteristic of the discharge is ascending. At higher current the discharge goes into the hollow cathode mode, filling the space between the plates, and it has an almost vertical current-voltage characteristic. The transition from a glow discharge mode into a hollow one possesses a hysteresis. At gas pressures $p \sim 1$ Torr the hollow cathode effect disappears, since the thickness of the cathode layer is small compared with the gap between the plates of the cathode. It is shown that when the collectors are placed on the anode across the gap between the plates of the hollow cathode, the radial profile of the electron current to the anode in the mode of electron beam has a sharp maximum at the axis of the discharge chamber. The profile is flatter if the chain of collectors on the anode is directed along the cavity of the cathode. Increasing the gas pressure leads to a strong scattering of the electron beam, and the radial profiles of electron current to the anode are approximately the same in both transverse directions in the glow mode as well as in the hollow cathode one.
**KEY WORDS:** DC glow discharge, hollow cathode, discharge ignition, the current-voltage characteristics, the radial structure, burning modes

## ЗАПАЛЮВАННЯ ТА РЕЖИМИ ГОРІННЯ РОЗРЯДУ ПОСТІЙНОГО СТРУМУ З ПОРОЖНИСТИМ КАТОДОМ

**В.О. Лісовський[1,2], І.А. Богодельний[1]**
[1] *Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна*
*61022, Харків, пл. Свободи 4, Україна*
[2] *Науковий фізико-технологічний центр*
*61022, Харків, пл. Свободи 6, Україна*

У цій роботі були виміряні криві запалювання тліючого розряду постійного струму з порожнистим і пласким катодами.

© Lisovskiy V.A., Bogodielnyi I.A., 2012

Показано, що при низькому тиску газу ($p \leq 0{,}05$ Торр) ліві гілки кривих запалювання для порожнистого катода і для пласких електродів співпадають. При високому тиску газу ($p \geq 0{,}3$ Торр) права гілка кривої запалювання розряду з порожнистим катодом близька до кривої запалювання для відстані між пласкими електродами, рівній зазору між краєм пластин порожнистого катода і пласким анодом. Виміряні вольт-амперні характеристики розряду з порожнистим катодом. Показано, що при низькому тиску газу $p < 0{,}1$ Торр розряд горить у високовольтній (електронно-променевій) формі зі зростаючою вольт-амперною характеристикою, коли вторинні електрони прискорюються вздовж силових ліній електричного поля і формують електронний пучок. При тиску газу $p \geq 0{,}1$ Торр розряд при низькому струму горить у тліючому режимі, в якому в порожнині між пластинами катода розрядне світіння практично відсутнє, а вольт-амперна характеристика розряду є зростаючою. При більш високих значеннях струму розряд переходить у режим порожнистого катода, заповнюючи простір між пластинами, і має практично вертикальну вольт-амперну характеристику. Перехід розряду з тліючого режиму в порожнистий має гістерезисний характер. При тиску газу $p \sim 1$ Торр ефект порожнистого катода зникає, тому що товщина катодного шару стає малою в порівнянні з зазором між пластинами катоду. Показано, що коли колектори на аноді розташовані упоперек зазору між пластинами порожнистого катоду, радіальний профіль електронного струму на анод в режимі електронного променя має різко виражений максимум в області осі розрядної камери. Профіль є більш плоским, якщо ланцюжок колекторів на аноді спрямовано вздовж порожнини катода. Підвищення тиску газу призводить до сильного розсіювання електронів пучка, при цьому радіальні профілі електронного струму на анод стають приблизно однаковими в обох поперечних напрямках як в тліючому, так і в порожнистому режимах.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** тліючий розряд постійного струму, порожнистий катод, запалювання розряду, вольт-амперні характеристики, радіальна структура, режими горіння

Тлеющий разряд с полым катодом широко используется во многих промышленных ионных приборах (стабилитроны и тиратроны), в газосветных лампах, спектральных источниках в атомно-абсорбционной спектроскопии, для накачки газоразрядных лазеров, сварки и плавки материалов электронной пушкой, для модификации поверхностей твердых тел (травление, осаждение тонких пленок), в аналитической и плазменной химии [1-3].

Полым катодом называется катод, рабочая поверхность которого имеет отрицательную кривизну или состоит из отдельных поверхностей (включая и плоские), ограничивающих часть пространства газоразрядного прибора и создающих полость. В качестве полых катодов часто используются трубки (круглого или прямоугольного сечения), а также две плоские параллельные друг другу пластины любой формы, имеющие электрическое соединение. Главной особенностью разрядов с полым катодом является следующий эффект: при прочих равных условиях ток при заданном напряжении оказывается больше, чем в случае использования плоского катода, и резко возрастает при уменьшении межэлектродного расстояния, когда область отрицательного свечения у противоположных катодов перекрывается и фарадеево темное пространство исчезает – эффект полого катода. Основные причины этого явления связаны с более эффективным использованием ионов и быстрых электронов для поддержания разряда, причем это использование сильно зависит от геометрии разрядного объема.

Главные особенности эффекта полого катода можно суммировать следующим образом [1,2]: Большое увеличение плотности тока наблюдается при уменьшении расстояния между стенками катода (или его радиуса) при постоянном напряжении. При средних давлениях для заданных напряжений и расстояний между стенками катода (или радиуса) разрядный ток слабо уменьшается при понижении давления. При низких давлениях может наблюдаться рост тока. Рабочие напряжения значительно ниже, чем для разряда с плоским катодом. Вольт-амперные характеристики разряда с полым катодом имеют малый положительный наклон. При низких давлениях газа разряд переходит в высоковольтную фазу, характеризующуюся присутствием электронного луча.

Геометрия электрических полей в высоковольтном разряде с полым катодом в этом случае такова, что по оси трубки формируется электронный луч. Граница катодного слоя приобретает воронкообразный профиль, и вершина плазменной воронки проникает внутрь полости катода. При этом электроны, ускоренные на каком-либо участке катодного падения, входят в этот тонкий конический плазменный стержень с большими скоростями, проходят его насквозь, попадают в противоположный участок катодного падения, тормозятся встречным полем, останавливаются, начинают движение в противоположном направлении, снова попадают в плазму, проходят ее и т.д. Быстрые электроны, стартующие с одной стороны катодного слоя, отражаются в обратном поле с противоположной стороны и возвращаются в область отрицательного свечения. Следовательно, они могут дополнительно размножаться, рождая электроны в слое, которые способны к дальнейшей ионизации. В результате таких осцилляций в полости происходит дополнительная (по сравнению с плоским катодом при том же напряжении) ионизация. Тормозясь во встречном поле, электроны формируют заметный отрицательный объемный заряд, который компенсирует положительный объемный заряд пространства катодного падения и способствует приближению границы плазмы к поверхности катода [1,2]. Кроме этого, уменьшая свою энергию при торможении во встречном поле, электроны более эффективно ионизуют газ и увеличивают плотность плазмы, прижимающейся к катоду. В результате действия этих факторов плазма прорывается внутрь катода, ток резко растет, напряжение на разрядном промежутке падает. Возникает эффект полого катода (“полый режим”), обусловленный осцилляцией внутри полости значительного количества быстрых электронов.

Хорошо известно применение тлеющего разряда с холодным катодом в стабилитронах и тиратронах. Обычные стабилитроны используют вертикальный участок вольт-амперной характеристики нормального тлеющего разряда. При этом приходится делать размеры катода большими, чтобы обеспечить увеличение тока за счет роста площади катода, покрытой свечением. Оптимальным в данном случае является использование полого катода [1].

Тлеющий разряд с полым катодом нашел широкое применение для непрерывной накачки газоразрядных лазеров. В большинстве лазерных устройств используется обычный разряд с цилиндрическим полым катодом, работающий при напряжениях между 200 и 400 В и имеющий практически вертикальную вольт-амперную характеристику. Однако в этих устройствах ток может быть неоднородно распределен по поверхности катода, приводя к появлению неустойчивостей. Эта проблема может быть решена с использованием сегментированного полого катода [4]. В работе [4] с помощью численного метода Монте-Карло определены пространственные распределения скорости ионизации, функция распределения электронов по энергиям, а также распределение тока быстрых электронов по поверхности анода. Получено, что пик рождения заряженных частиц находится в центре разрядной камеры благодаря фокусирующим свойствам геометрии катода. В работах [5-7] исследованы разряды с сегментированным полым катодом, используемые для накачки ультрафиолетовых лазеров на основе ионов меди. Показано, что в данной геометрии полого катода происходит фокусировка быстрых электронов в центральной части разряда даже при сравнительно высоких давлениях газа. Использование сегментированного катода позволяет поддерживать горение разряда при более высоких напряжениях, что приводит к более эффективному возбуждению распыленных с катода металлов. В работе [8] сегментированный полый катод был использован для накачки лазера в видимом диапазоне, использующий переход в однократно ионизованном паре золота (Au II).

Авторы работы [9] показали, что уменьшение диаметра отверстия в полом катоде до 100 мкм позволило расширить рабочий диапазон источника эксимерного излучения вплоть до атмосферного давления. В работе [10] с помощью численного моделирования получены профили заряженных частиц (электронов, ионов аргона и меди), а также распыленных атомов меди в продольном разряде с полым катодом. Получено, что заряженные частицы распределены в полом катоде сильно неоднородно. С помощью аналитической модели в работе [11] получены соотношения между напряжением, током, плотностью плазмы и осевой структурой разряда с продольным полым катодом.

Кроме того, разряд с полым катодом нашел широкое применение для осаждения тонких пленок. Так, в работе [12] тонкие пленки меди (вплоть до 5 мкм) были осаждены на подложки из нержавеющей стали, которые располагались на внутренней поверхности полого катода. Авторы работы [13] разработали комбинированный источник с разрядом на основе полого катода, работающий при атмосферном давлении и позволяющий обработку поверхностей большой площади (например, рулонных материалов), в том числе термочувствительных. Подобный комбинированный источник на основе полого катода применен авторами [14] для осаждения полимерных пленок на металлические и полимерные фольги, мембраны, текстиль, бумагу и т.д. Ионная система с полым катодом использована авторами работы [15] для осаждения пленок TiN.

Одним из важнейших применений систем с полым катодом являются ионные источники с широким пучком [16]. Авторы работы [16] исследовали коаксиальную электродную структуру с цилиндрическим полым катодом и центральным стержневым анодом, на основе которой были получены широкие ионные пучки с площадью сечения до 200 $см^2$, плотностью тока пучка до 10 $мА/см^2$ и энергией до 50 кэВ.

Разряды с полым катодом используются также в источниках электронов. Авторы работы [17] описали генерацию сильноточного электронного пучка в пульсирующем разряде с полым катодом, в котором использовалось ускоряющее напряжение с амплитудой 20 кВ и длительностью импульсов 500 нс.

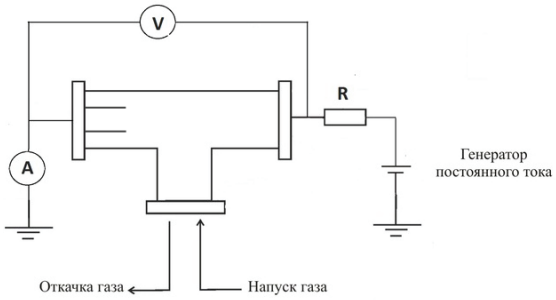
В статье [18] разработана двумерная самосогласованная модель тлеющего разряда с полым плоскопараллельным катодом в аргоне. Эта модель содержала гидродинамическое описание положительных ионов и медленных электронов, а также кинетическое моделирование движения быстрых электронов. В эксперименте разряд зажигался между двумя плоскими медными дисковыми катодами, окруженными металлической трубой-анодом. Экспериментально и теоретически были получены пространственные профили потенциала плазмы, плотности ионов и интенсивности свечения.

Влияние геометрических размеров, материала катода и рода газа на область оптимальных давлений тлеющего разряда с цилиндрическим полым катодом было изучено в работе [19]. Подробно исследовано напряжение горения, радиальное распределение интенсивности свечения и ширина темного катодного пространства разряда с цилиндрическим полым катодом из железа, никеля и молибдена в диапазоне давлений гелия, неона, аргона и воздуха от $10^{-2}$ до 10 Торр. В работе [20] представлены экспериментальные и теоретические результаты изучения функции распределения электронов по энергиям в самостоятельном тлеющем разряде с цилиндрическим полым катодом в азоте и кислороде. Показано, что в таком разряде в азоте на функции распределения электронов при энергии 2-4 эВ появляется значительный зазор (обедненный электронами с данной энергией), что связано с колебательным возбуждением молекул азота. Исследованию характеристик импульсного разряда с цилиндрическим полым катодом посвящена работа [21], в которой определена временная эволюция плотности распыленных атомов магния в фазе послесвечения.

Для того чтобы корректно применять тлеющий разряд, необходимо знать условия его существования и количественные характеристики в различных режимах горения, поэтому этот вопрос уже давно исследуется рядом научных групп. Как видно из приведенного выше краткого обзора, в большинстве работ исследовался тлеющий разряд с цилиндрическим полым катодом, а также с сегментированным катодом. В настоящее время в литературе имеется лишь несколько работ [22-25], посвященных зажиганию разряда с полым катодом. Также необходимо изучить характеристики разряда с полым катодом в широком диапазоне давлений газа. В связи с этим целью данной работы было экспериментально исследовать пробой газа, вольт-амперные характеристики и радиальные профили электронного тока на анод тлеющего разряда постоянного тока в камере с полым катодом.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И МЕТОДИКА ОБРАБОТКИ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для изучения зажигания и вольт-амперных характеристик тлеющего разряда постоянного тока с полым катодом использовалась разрядная камеры, схема которой показана на рис.1. Кварцевая трубка имела внутренний диаметр 56 мм. Диаметр плоского анода из нержавеющей стали был равен 55 мм. Полый катод имел следующую форму. Две пластины толщиной 2 мм располагались на расстоянии 8 мм друг от друга и крепились к плоскому диску диаметром 55 мм. Концы пластин находились на расстоянии 37 мм от плоской части катода. Весь катод был изготовлен из дюралюминия. Такая форма полого катода удобна для визуальных наблюдений структуры разряда, распределения свечения в полости катода при различных режимах горения.



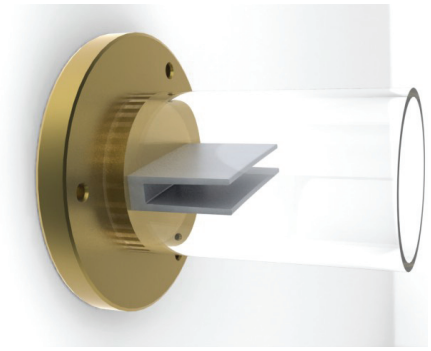



Рис.1. Схема и внешний вид экспериментальной установки с полым катодом.

Эксперименты проводились для двух расстояний между плоскими частями электродов (анода и катода) 100 мм и 395 мм. Азот подавался в камеру с помощью системы напуска газа СНА-1. Для регистрации давления газа в диапазоне от $10^{-3}$ Торр до атмосферного мы использовали вакуумный термоэлектрический датчик 13ВТ3-003. Откачка газа производилась с помощью форвакуумного насоса, что обеспечивало предельный вакуум порядка $10^{-3}$ Торр. Генератор постоянного тока подключался к аноду, а катод был заземлен. Величина разрядного тока регистрировалась цифровым амперметром, а напряжение на разряде – цифровым вольтметром. В разрядную цепь подключалось внешнее сопротивление величиной 50 кОм, которое ограничивало ток и препятствовало возникновению катодных пятен. Эксперименты проводились при давлениях азота $p = 0{,}02 – 10$ Торр в диапазоне постоянного напряжения $U_{dc} \le 4000$ В.

Перед началом измерений проводилась очистка поверхности полого катода ионной бомбардировкой. Для этого зажигался разряд в высоковольтном режиме, давление азота было 0,1 Торр, разрядный ток - примерно 20 мА, время очистки - 10 минут. Такая очистка катода нужна для удаления с его поверхности оксидной пленки, микропробои которой вызывают пульсации разрядных характеристик. После очистки полого катода появляется повторяемость результатов экспериментов, выполненных при одних и тех же условиях в разные дни.

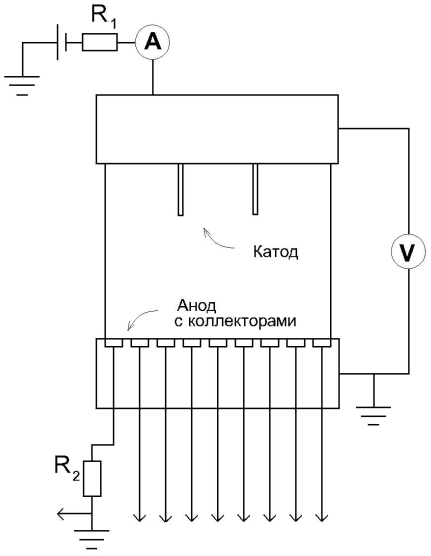



Рис. 2. Схема разрядной камеры, содержащей анод с коллекторами.

Для измерения радиального распределения электронного тока на анод был создан электрод (диаметром 55 мм) с 9 коллекторами тока, расположенными вдоль прямой линии по диаметру этого электрода (рис.2). Диаметр каждого коллектора был равен 1 мм. Коллекторы электрически были изолированы от электрода, при этом собирающие поверхности коллекторов и поверхность электрода находились в одной плоскости. Ток, собираемый коллекторами, проходил через резисторы сопротивлением 1 кОм, а падение напряжения на каждом резисторе подавалось на ПК. Токи на все коллекторы измерялись одновременно, при этом измерения проводились 20 раз, а затем полученные

результаты усреднялись. Генератор постоянного тока подключался к катоду, а анод был заземлен.

## ЗАЖИГАНИЕ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА ПОСТОЯННОГО ТОКА С ПОЛЫМ КАТОДОМ

Для зажигания тлеющего разряда необходимо, чтобы скорость рождения заряженных частиц вследствие ионизации молекул газа электронным ударом и вторичной ион-электронной эмиссии из поверхности катода была равна скорости потерь на стенках трубки вследствие диффузии и дрейфового ухода на электроды. Этот баланс должен выполняться в разрядных камерах любой геометрии.

На рис. 3 приведены кривые зажигания тлеющего разряда в азоте в камере, показанной на рис. 1, с полым катодом и с двумя зазорами между плоскими электродами ($L$ = 100 мм и $L$ = 65 мм). В камере с полым катодом расстоянию $L$ = 100 мм соответствует зазор между плоскими частями электродов, а $L$ = 65 мм – зазор между анодом и краями пластин, составляющими полый катод.

Из рисунка видно, что при низких давлениях газа совпадают левые ветви кривых зажигания для полого катода и для зазора между плоскими электродами $L$ = 100 мм. По-видимому, при низких давлениях газа пробой в камере с полым катодом происходит между плоскими частями электродов, то есть вдоль наибольшего пути. При низких давлениях газа первый коэффициент Таунсенда для рождения ион-электронных пар ударами быстрых электронов невелик, поэтому оптимальной для развития электронной лавины является область между плоскими поверхностями электродов (вдоль самых длинных силовых линий электрического поля). Поэтому мы и видим совпадение левых ветвей кривых зажигания для полого катода и для плоских электродов, зазор между которыми равен расстоянию между плоскими поверхностями полого катода и анода. При более высоких давлениях газа правая ветвь кривой зажигания разряда с полым катодом близка к кривой зажигания для зазора между плоскими электродами $L$ = 65 мм. В этом случае разряд зажигается между анодом и краями пластин, составляющих полый катод. При этом кривая зажигания для полого катода проходит немного ниже кривой для плоского зазора, так как вблизи краев пластин полого катода распределение электрического поля сильно неоднородно.

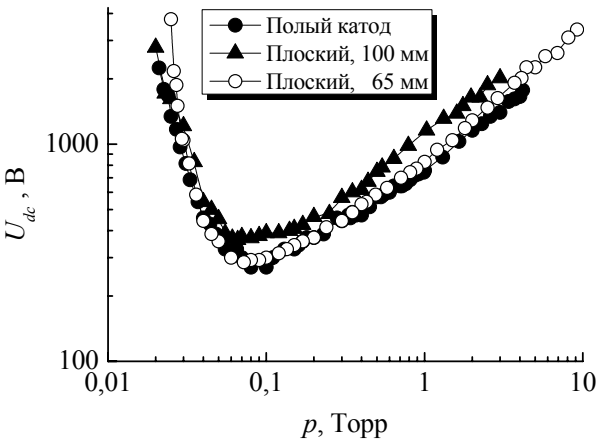



Рис.3. Кривые зажигания разряда постоянного тока с полым катодом ($L$ = 100 мм), с плоским катодом ($L$ = 100 мм), с плоским катодом ($L$ = 65 мм).

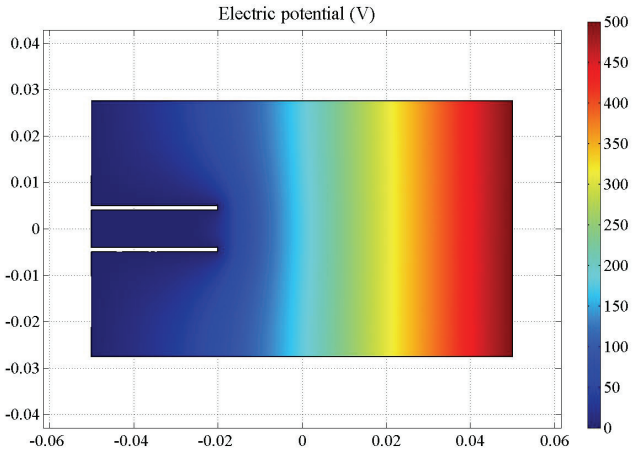



Рис.4. Распределение потенциала в камере с полым катодом при отсутствии разряда. Катод расположен слева.

На рис.4 представлено распределение потенциала электрического поля в камере с полым катодом при отсутствии разряда. В этом случае распределение поля является вакуумным, то есть не возмущенным заряженными частицами в зазоре между электродами. Данное распределение потенциала было получено с помощью программы Femlab, которая позволяет численно решать дифференциальные уравнения с частными производными для многих прикладных задач. На картине распределения потенциала мы видим почти вертикальные эквипотенциальные линии вдали от полого катода (вблизи анода). Вблизи самого полого катода эти линии сильно искривлены, огибая полый катод. Данное распределение потенциала было получено для напряжения на электродах 500 В. Из рисунка видно, что основное падение напряжения наблюдается в пространстве между краями пластин полого катода и анодом, до этой границы падение напряжения не превышает 100 В.

Анализ полученных в данной работе результатов показывает, что целесообразно повторить измерения кривых зажигания для камеры с полым катодом, которая использовалась в работе Гусевой [22]. В ее экспериментах полый катод имел форму цилиндрического стакана, в который наподобие поршня с небольшим зазором входил анод. Положение анода внутри полости могло меняться, так что расстояние между дном катодного стакана и плоской рабочей поверхностью анода могло быть сделано различным. В работе [22] получено, что чем больше отношение длины полого катода к его диаметру (чем больше неоднородность распределения электрического поля в полости), тем большее напряжение необходимо, чтобы зажечь разряд.

Левые ветви кривых зажигания для полого катода прошли в диапазоне более высоких давлений газа и приложенных напряжений, чем для плоских электродов. Однако из рис. 3 следует, что левые ветви кривых зажигания для полого катода в экспериментах Гусевой [22] должны были совпасть с соответствующими левыми ветвями кривых зажигания тлеющего разряда с плоскими электродами. Зажигание разряда в условиях левых ветвей соответствует развитию электронных лавин вдоль наиболее длинных силовых линий электрического поля, длина которых была близка к длине силовых линий для случая плоских электродов.

## ВОЛЬТ-АМПЕРНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ И РЕЖИМЫ ГОРЕНИЯ РАЗРЯДА С ПОЛЫМ КАТОДОМ

Эксперименты были проведены с разрядной трубкой диаметром 55 мм и двумя различными расстояниями между электродами: 100 мм и 395 мм. Сначала рассмотрим результаты для случая зазора между электродами 100 мм. Сравним при этом вольт-амперные характеристики для разрядов с полым катодом (рис.5) и с плоскими электродами (рис.6).

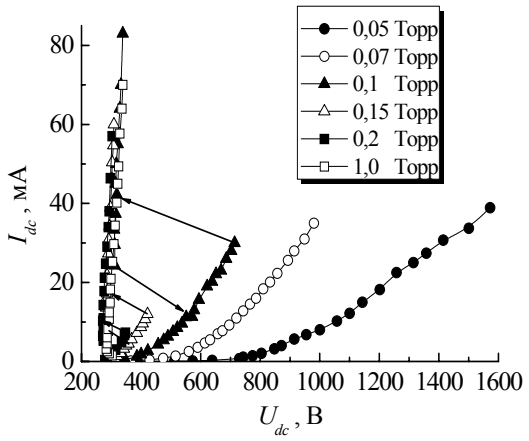



Рис.5. Вольт-амперные характеристики тлеющего разряда с полым катодом при различных давлениях азота и расстоянии между плоскими частями электродов 100 мм.

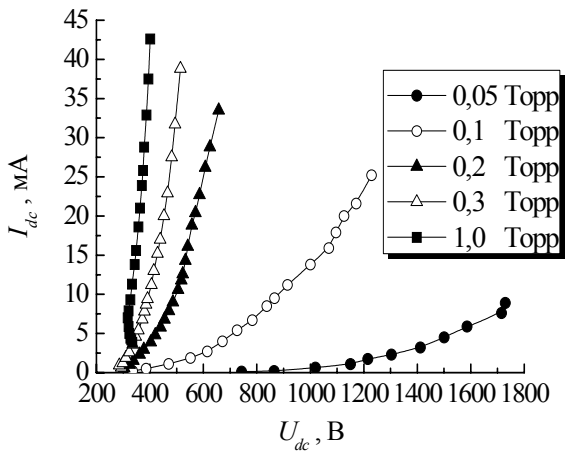



Рис.6 Вольт-амперные характеристики тлеющего разряда с плоским катодом при различных давлениях азота и расстоянии между электродами 100 мм.

Из этих рисунков видно, что при низких давлениях (см., например, кривые для 0,05 Topp) разрядный ток растет с напряжением на электродах гораздо быстрее в случае полого катода, чем для плоских электродов. При таком низком давлении разряд с полым катодом горит в режиме электронного пучка (в высоковольтной форме, которую еще называют электронно-лучевой [1]), что, по-видимому, и приводит к более интенсивной ионизации молекул газа быстрыми электронами. В этом режиме вторичные электроны, вышедшие из поверхности катода, ускоряются вдоль силовых линий электрического поля и формируют электронный пучок. Этот режим имеет растущую вольт-амперную характеристику, то есть повышение разрядного тока сопровождается ростом напряжения на электродах. Граница катодного слоя огибает полый катод на значительном расстоянии и не может проникнуть в полость между пластинами полого катода. Из фотографии на рис. 7 видно синее свечение, простирающееся от катодной полости до самого анода, и указывающее на наличие электронов высокой энергии в этой области разряда.

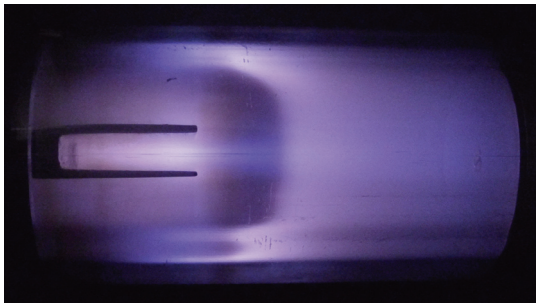


Рис.7. Фотография разряда при давлении азота $p$ = 0.05 Topp, режим электронного пучка, расстояние между электродами 100 мм, разрядный ток 10 мА.

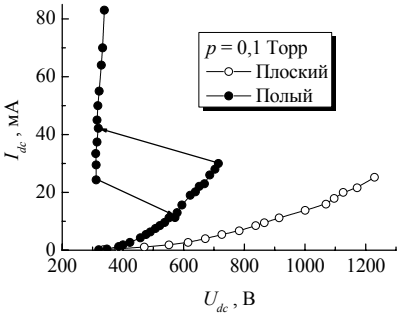
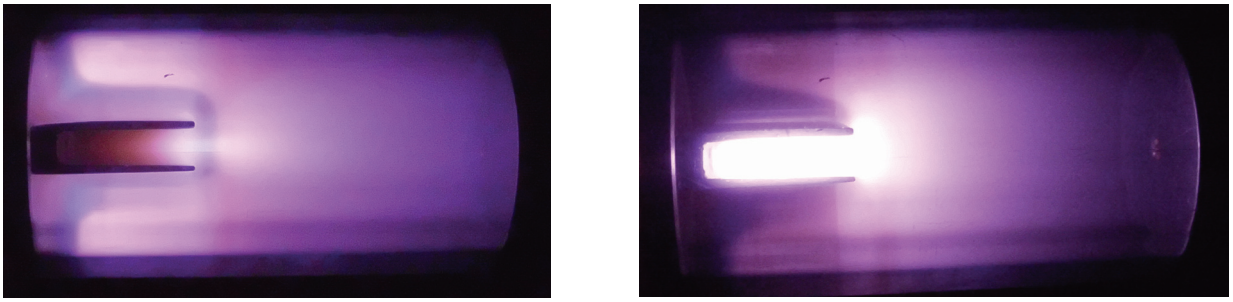



Рис.8. Вольт-амперные характеристики тлеющего разряда с плоским и полым катодами при давлении азота 0,1 Topp и расстоянии между электродами 100 мм.

Вольт - амперные характеристики для разряда с полым и плоским катодами при давлении азота 0,1 Topp сравниваются на рис. 8. Из рисунка следует, что в тлеющем режиме разряда с полым катодом ток возрастает с повышением напряжения гораздо быстрее, чем для плоских электродов. При этом давлении газа наблюдается резкий гистерезисный переход в полый режим с одновременным понижением напряжения на электродах и повышением разрядного тока. На рис. 9 представлены фотографии разрядов в тлеющем и полом режимах. Для них характерно отсутствие положительного столба со стратами, а также анодного свечения.



а) б)

Рис.9. Фотография разряда при давлении азота $p$ = 0.15 Торр, расстояние между электродами 100 мм.
а) тлеющий режим, разрядный ток 10 мА. б) режим с полым катодом, разрядный ток 10 мА.

Из сравнения вольт-амперных характеристик для плоского и полого катодов при давлении азота 1 Торр видно (рис. 10), что наличие полого катода позволяет поддерживать горение разряда при заметно более низком напряжении, чем для плоских электродов. При этом разрядный ток возрастает с напряжением гораздо быстрее в случае полого катода, чем плоских электродов. Вблизи анода наблюдаются как анодное свечение, так и однородный положительный столб.

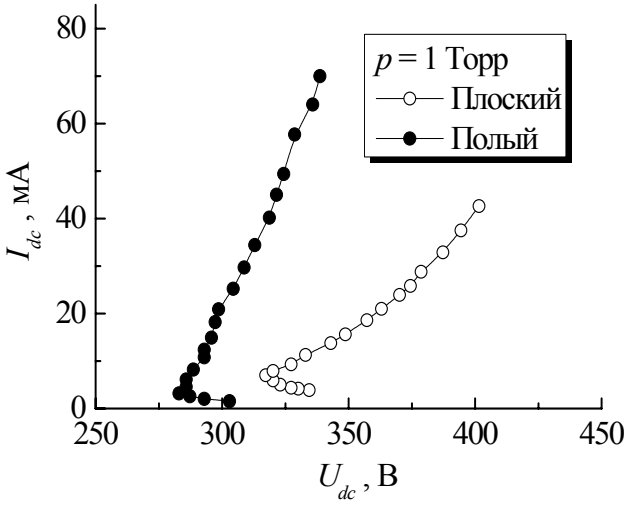



Рис.10. Вольт-амперные характеристики тлеющего разряда с плоским и полым катодами при давлении азота 1 Торр и расстоянии между электродами 100 мм.

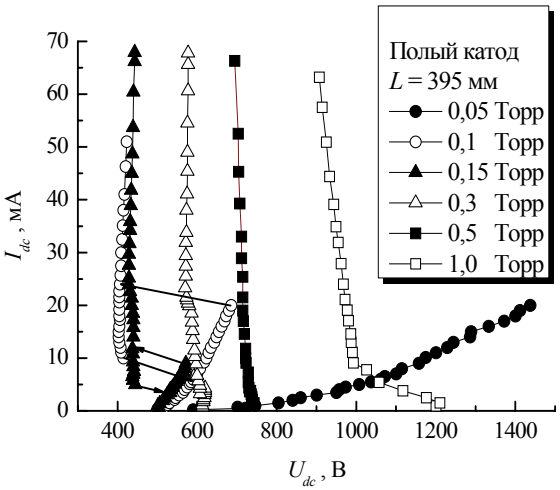
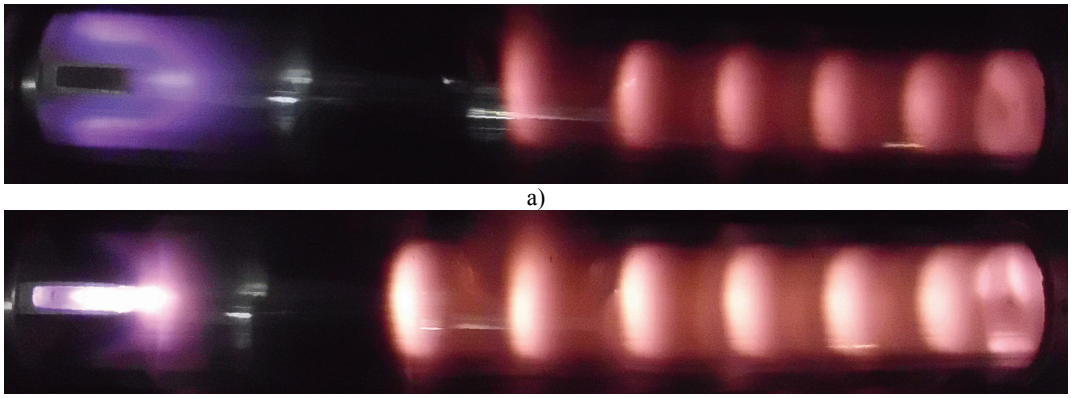



Рис.11. Вольт-амперные характеристики тлеющего разряда с полым катодом при различных давлениях азота и расстоянии между плоскими частями электродов 395 мм.

Теперь рассмотрим результаты для расстояния между электродами 395 мм. На рис. 11 показаны вольт-амперные характеристики тлеющего разряда с полым катодом при разных давлениях в разрядной камере. При самых низких давлениях газа (на рисунке это соответствует случаю 0,05 Торр) разряд горит в высоковольтной форме. При этом граница катодного слоя не проникает в зазор между пластинами, составляющими полый катод, а огибает его на некотором удалении. В зазоре между пластинами полого катода видно довольно яркое свечение, что указывает на наличие электронов высокой энергии в этом зазоре. Электроны пучка, вылетающего из катодного слоя, формируют протяженное отрицательное свечение в трубке. Положительный столб в этом режиме не наблюдается, только на аноде имеются анодные пятна.

При более высоких давлениях газа ($p \geq 0{,}1$ Торр) разряд сначала горит в тлеющем режиме, фотография которого показана на рис. 12а. Этот режим визуально отличается от высоковольтного тем, что в полости между пластинами катода разрядное свечение практически отсутствует. Однако и в этом же случае вольт-амперная характеристика разряда является растущей. Граница катодного слоя прогибается по направлению к полости между пластинами полого катода, но пока не проникает в этот зазор. В то же время граница катодного слоя проникает в область между пластинами катода и стенкой разрядной трубки. При более высоких значениях тока разряд переходит в режим полого катода, что сопровождается резким увеличением разрядного тока с одновременным понижением напряжения на электродах. Этот переход происходит скачкообразно, при этом разряд заполняет пространство между пластинами полого катода (рис. 12б) и состоит из двух катодных слоев, с общим отрицательным свечением между ними. В этом режиме вольт-амперная характеристика представляет собой практически вертикальную прямую, разряд горит в нормальном режиме, заполняя только часть поверхности полого катода. При понижении тока в полом режиме свечение между пластинами катода ослабевает и затем разряд скачком возвращается в тлеющий режим, а на вольт-амперной характеристике наблюдается гистерезис.



а)

б)

Рис. 12. Фотографии тлеющего разряда с полым катодом, давление азота 0,2 Торр.
а) тлеющий режим, разрядный ток 5 мА; б) полый режим, разрядный ток 10 мА. Катод расположен слева.

В рассматриваемой в данном случае длинной трубке наблюдается также стратифицированный положительный столб, состоящий из чередующихся темных и светлых слоев. Это слоистое состояние является более выгодным для положительного столба при низких давлениях газа (в условиях больших потерь заряженных частиц на стенках трубки вследствие амбиполярного диффузионного ухода), так как напряжение распределено в положительном столбе вдоль оси разряда в виде ступенек, и электроны более эффективно набирают энергию и ионизуют молекулы газа. В области отрицательного свечения в тлеющем режиме находится максимум плотности плазмы [3]. В самом отрицательном свечении и в темном фарадеевом пространстве ток переносится за счет диффузионного потока из области максимальной плотности плазмы в сторону анода. Когда этот диффузионный поток становится недостаточным для переноса тока, а плотность плазмы спадает до некоторой критической величины, формируется положительный столб.

При переходе разряда в полый режим отрицательное свечение становится почти полностью сосредоточенным в полости между пластинами катода. Это приводит к тому, что граница положительного столба смещается ближе к катоду. В этом случае разряд горит в нормальном режиме, заполняя с ростом тока не только поверхности катода в зазоре между пластинами, но и распространяясь затем на внешнюю поверхность пластин, а также на плоскую поверхность катода.

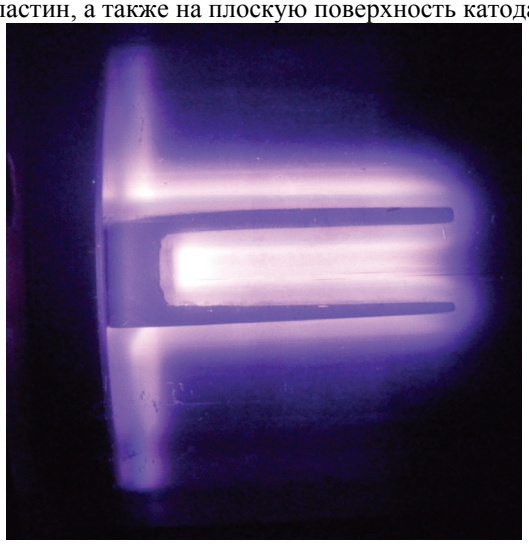


Рис.13. Фотографии разряда в катоде в полом режиме, давление азота 1 Торр, разрядный ток 30 мА.

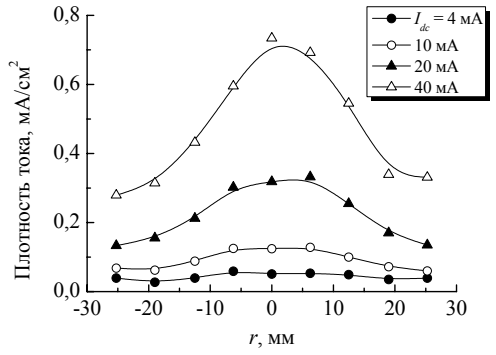
При давлениях азота выше 0,3 Торр переход из тлеющего в полый режим перестает быть скачкообразным и происходит непрерывно, а гистерезис исчезает. С повышением давления газа положительный столб становится более однородным.

Падение напряжения на положительном столбе сильно зависит от разрядного тока, давления газа и геометрии разрядной трубки. Поэтому расширение разрядного пятна нормального режима по поверхности катода и изменение длины положительного столба может сопровождаться как увеличением, так и уменьшением напряжения на электродах с ростом тока.

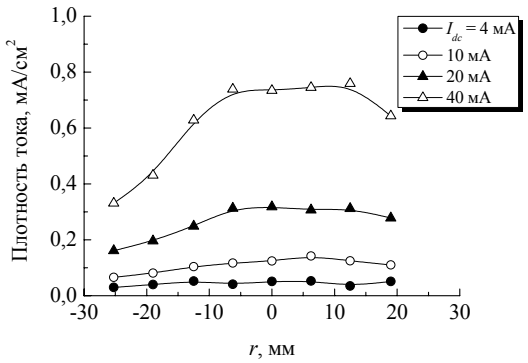
При давлении азота 1 Торр вольт-амперная характеристика в нормальном режиме является отрицательной во всем исследованном диапазоне разрядных токов. На фотографии, представленной на рис. 13, видно, что в полости между пластинами катода наблюдаются два катодных слоя, а также два отрицательных свечения, перекрывающихся в центре зазора между плоскостями полого катода. В этот же зазор начинает проникать темное фарадеево пространство. В этом случае эффект полого катода полностью отсутствует, так как толщина катодного слоя становится малой по сравнению с зазором между пластинами катода.

## РАДИАЛЬНАЯ СТРУКТУРА РАЗРЯДА С ПОЛЫМ КАТОДОМ

Целью настоящего эксперимента было исследование радиального распределения плотности тока электронов, приходящих на поверхность анода в различных режимах горения разряда. Принципиальная схема разрядной камеры, которая использовалась в данном случае, представлена на рис. 2. Сначала рассмотрим радиальные профили для разряда с электронным пучком, который наблюдается при низких давлениях газа.

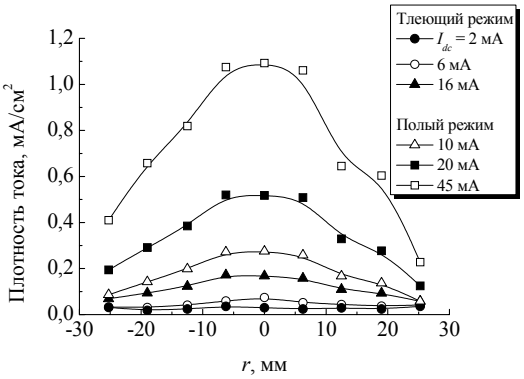



а)

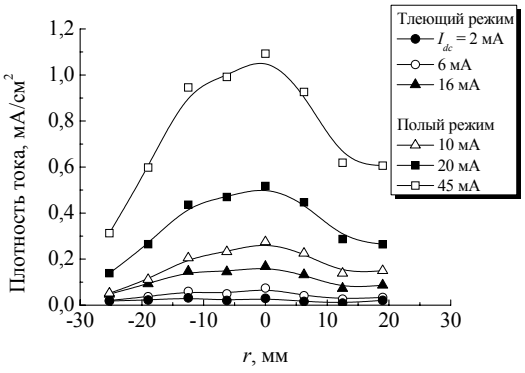



б)

Рис.14. Профили электронного тока на анод при $p$ = 0,05 Торр при различных разрядных токах в режиме электронного пучка:
а) коллекторы расположены поперек полого катода;
б) коллекторы расположены вдоль полого катода.




а)




б)

Рис.15. Профили электронного тока на анод при $p$ = 0,15 Торр при различных разрядных токах в тлеющем и полом режимах:
а) коллекторы расположены поперек полого катода;
б) коллекторы расположены вдоль полого катода.

На рис. 14 показаны радиальные распределения плотности электронного тока на анод в двух различных перпендикулярных направлениях. В первом случае коллекторы на аноде располагались поперек зазора между пластинами полого катода. Во втором случае цепочка коллекторов на аноде была направлена вдоль полости катода. В первом случае радиальный профиль электронного тока имеет резко выраженный максимум в области оси разрядной камеры и быстро спадает в направлении стенок трубки. Во втором случае профиль является более плоским. В данном эксперименте не проводился анализ приходящих на анод электронов по энергиям. На анод приходят как электроны пучка, вышедшего из полого катода, так и медленные электроны, рожденные в плазме, в том числе и этим же электронным пучком. Из рис. 14 видно, насколько однородным является пучок электронов, выходящих из зазора полого катода, а также насколько этот пучок расходится при своем движении к аноду.

При более высоких давлениях газа происходит сильное рассеяние электронов пучка. При давлении азота порядка 0,05 Торр (рис. 14) электронный пучок является хорошо сфокусированным и явно достигает поверхности анода, слабо рассеиваясь по пути. Повышение давления газа в 3 раза приводит к сильному рассеянию электронов пучка, при этом часть электронов уходит на стенки трубки, не достигая поверхности анода. Как видно из рис. 15, радиальные профили электронного тока на анод становятся примерно одинаковыми в обоих поперечных направлениях. Переход разряда в полый режим не изменяет существенно эти радиальные профили.

## ВЫВОДЫ

В данной работе были измерены кривые зажигания тлеющего разряда постоянного тока с полым и плоским катодами при зазоре между электродами $L$ = 100 мм. Показано, что при низких давлениях газа совпадают левые ветви кривых зажигания для полого катода и для зазора между плоскими электродами $L$ = 100 мм. По-видимому, при низких давлениях газа пробой в камере с полым катодом происходит между плоскими частями электродов, то есть вдоль наибольшего пути, и оптимальной для развития электронной лавины является область между плоскими поверхностями электродов. При более высоких давлениях газа правая ветвь кривой зажигания разряда с полым катодом близка к кривой зажигания для зазора между плоскими электродами $L$ = 65 мм, то есть между краем пластин полого катода и плоским анодом. При этом кривая зажигания для полого катода проходит немного ниже кривой для плоского зазора, так как вблизи краев

пластин полого катода распределение электрического поля сильно неоднородно.

Измерены вольт-амперные характеристики разряда с полым катодом для двух различных расстояний между электродами 395 мм и 100 мм. Показано, что при низких давлениях газа разряд горит в высоковольтной (электронно-лучевой) форме с растущей вольт-амперной характеристикой, когда вторичные электроны ускоряются вдоль силовых линий электрического поля и формируют электронный пучок.

При давлениях газа $p \geq 0{,}1$ Торр разряд сначала горит в тлеющем режиме, в котором в полости между пластинами катода разрядное свечение практически отсутствует, а вольт-амперная характеристика разряда является растущей. Граница катодного слоя прогибается по направлению к полости между пластинами полого катода, но пока не проникает в этот зазор. При более высоких значениях тока разряд переходит в режим полого катода, заполняя пространство между пластинами, и имеет практически вертикальную вольт-амперную характеристику. Этот переход происходит скачкообразно, при этом разряд полого катода и состоит из двух катодных слоев, с общим отрицательным свечением между ними. Переход разряда из тлеющего режима в полый и обратно имеет гистерезисный характер.

При давлениях газа $p \sim 1$ Торр эффект полого катода полностью исчезает, так как толщина катодного слоя становится малой по сравнению с зазором между пластинами катода. В полости между пластинами катода наблюдаются два катодных слоя, а также два отрицательных свечения, перекрывающихся в центре зазора между плоскостями полого катода.

Исследовано также радиальное распределение плотности тока электронов, приходящих на поверхность анода в различных режимах горения разряда. Показано, что когда коллекторы на аноде располагаются поперек зазора между пластинами полого катода, радиальный профиль электронного тока имеет резко выраженный максимум в области оси разрядной камеры и быстро спадает в направлении стенок трубки. Профиль является более плоским, если цепочка коллекторов на аноде направлена вдоль полости катода. При более высоких давлениях газа происходит сильное рассеяние электронов пучка. При давлении азота порядка 0,05 Торр электронный пучок является хорошо сфокусированным, слабо рассеиваясь по пути. Повышение давления газа приводит к сильному рассеянию электронов пучка, при этом часть электронов уходит на стенки трубки, не достигая поверхности анода, а радиальные профили электронного тока на анод становятся примерно одинаковыми в обоих поперечных направлениях как в тлеющем, так и в полом режимах.

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Moskalev B.I. Razryad s polym katodom. – M.: Energiya, 1969. – 184 s.
2. Entsiklopediya nizkotemperaturnoy plazmy. Vvodnyy tom 2, pod red. Fortova V.E. – M.: Nauka, 2000 – 634 s.
3. Rayzer Yu.P. Fizika gazovogo razryada. – M.: Nauka, 1987. – 592 c.
4. Donko Z., Rozsa K., Tobin R.C. Monte Carlo analysis of the electrons motion in a segmented hollow cathode discharge // J. Phys. D: Appl. Phys. – 1996. – Vol.29, №1. – P.105-114.
5. Donko Z., Apai P., Szalai L., Rozsa K., Tobin R.C. The segmented hollow cathode discharge: A pumping source for UV metal ion lasers // IEEE Trans. Plasma Sci. – 1996. – Vol.24, №1. – P.33-34.
6. Donko Z., Szalai L., Rozsa K. High-gain ultraviolet Cu-II lasers in a segmented hollow cathode discharge // IEEE J. Quantum Electronics. – 1998. – Vol.34, №1. – P. 47-53.
7. Donko Z., Rozsa K., Szalai L. High-voltage hollow cathode discharges: Laser applications and simulations of electron motion // Plasma Physics Reports. – 1998. – Vol.24, №7. – P.588-598.
8. Bano G., Szalai L., Kutasi K., Hartmann P., Donko Z., Rozsa K., Kiss A., Adamowicz T.M. Operation characteristics of the Au-II 690-nm laser transition in a segmented hollow-cathode discharge // Appl. Phys. B. – 2000. – Vol.70. – P. 521-525.
9. El-Habachi A., Schoenbach K.H., Generation of intense excimer radiation from high-pressure hollow cathode discharges // Appl. Phys. Lett. - 1998. – Vol.73, №7. – P. 885-887.
10. Mihailova D., Grozeva M., Hagelaar G.J.M., van Dijk J., Brok W.J.M., van der Mullen J.J.A.M. A flexible platform for simulations of sputtering hollow cathode discharges for laser applications // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2008. – Vol.41, №24. – P. 245202 (10pp).
11. Hagelaar G.J.M., Mihailova D.B., van Dijk J. Analytical model of a longitudinal hollow cathode discharge // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2010. – Vol.43. – P. 465204 (11pp).
12. Baggio-Scheid V.H., Neri J.W., de Vasconcelos G. Atomic emission spectroscopy of a hollow cathode discharge used for deposition applications // Surface and Coatings Technology. – 2001. – Vol.146-147. – P.469–473.
13. Barankova H., Bardos L. Hollow cathode plasma sources for large area surface treatment // Surface and Coatings Technology. – 2001. – Vol.146-147. – P. 486–490.
14. Kozec D., Engemann J., Mildner M., Theirich N.B. Multi-jet hollow cathode discharge for remote polymer deposition // Surface and Coatings Technology. – 1997. – Vol.93. – P. 128–133.
15. Chen Y.M., Yu G.P., Huang J.H. Role of process parameters in the texture evolution of TiN films deposited by hollow cathode discharge ion plating // Surface and Coatings Technology. – 2001. – Vol.141. – P.156–163.
16. Gavrilov N.V., Mesyats G.A., Radkovski G.V., Bersenev V.V. Development of technological sources of gas ions on the basis of hollow-cathode glow discharges // Surface and Coatings Technology. – 1997. – Vol.96. – P.81–88.
17. Gleizer J. Z., Krokhmal A., Krasik Ya. E., Felsteiner J. High-current electron beam generation by a pulsed hollow cathode // J. Appl. Phys. – 2002. – Vol. 91, №5. – P.3431-3443.
18. Kutasi K., Donko Z. Hybrid model of a plane-parallel hollow-cathode discharge // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2000. – Vol.33, №9. – P.1081-1089.
19. Kirichenko V.I., Tkachenko V.M., Tyutyunnik V.B. Vliyanie geometricheskikh razmerov, materiala katoda i roda gaza na

oblast' optimal'nykh davleniy tleyushchego razryada s tsilindricheskim polym katodom // ZhTF. – 1976. – T.46, №9. – C. 1857-1867.

20. Bazhenov V.Yu., Ryabtsev A.V., Soloshenko I.A., Terentyeva A.G., Tsiolko V.V., Shchedrin A.I. Investigation of the electron distribution function in the glow discharge with hollow cathode // Proc. 15th Intern. Symp. on Plasma Chemistry, 2001, Orleans, France. - Vol.3. - P.879-884.
21. Rusinov I.M., Blagoev A.B. Influence of hydrogen on the sputtered atoms' transport in a cylindrical hollow cathode // Vacuum. – 2000. – Vol.58. – P.256–262.
22. Guseva L.G. Discharge striking in non-uniform fields at low gas pressures. In “Investigations into electrical discharges in gases”, Ed. by Klyarfeld B.N. – Oxford: Pergamon press, 1964. – C.12-35.
23. Eichhorn H., Schoenbach K.H., Tessnow T. Paschen’s law for a hollow cathode discharge // Appl. Phys. Lett. – 1993. – Vol.63, №18. – P.2481-2483.
24. Popovici C., Somesan M. Electrostatic field distribution and breakdown potential for a hollow-electrode system in rare gases // International Journal of Electronics. – 1965. – Vol.18, №3. – P.255-267.
25. Pak H., Kushner M.J. Breakdown characteristics in nonplanar geometries and hollow cathode pseudospark switches // J. Appl. Phys. – 1992. – Vol.71, №1. – P.94-100.

*УДК 621.039.56; 621.385*

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПЕРЕХОДНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НЕРЕЛЯТИВИСТСКИМИ ЭЛЕКТРОННЫМИ СГУСТКАМИ НА РАЗЛИЧНЫХ ЭЛЕКТРОДИНАМИЧЕСКИХ НЕОДНОРОДНОСТЯХ

**С.С. Геращенко, В.И. Гриценко, В.И. Муратов, В.Д. Федорченко**
*Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина, физико-технический факультет*
*пл. Свободы 4, Харьков, Украина, 61022*
Received 12 November 2012

В работе экспериментально исследуется переходное электромагнитное излучение когерентными нерелятивистскими электронными сгустками на различных электродинамических неоднородностях. Показано, что существенное влияние на спектры переходного излучения оказывает быстрота перестройки направления движения электронов проводимости, которая происходит при пролете через диафрагмы. Для увеличения мощности переходного излучения использовались спиральные структуры. Для совмещенного электрического и магнитного диполя средняя мощность более чем на порядок превышала среднюю мощность на системе диафрагм.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** электронный сгусток, переходное излучение, диафрагма, спираль, электромагнитный импульс.

## EXPERIMENTAL STUDY OF TRANSITION RADIATION BY NONRELATIVISTIC ELECTRON BUNCHES ON DIFFERENT ELECTRODYNAMIC HETEROGENEITIES

**S.S. Geraschenko, V.I. Gritsenko, V.I. Muratov, V.D. Fedorchenko**
*Kharkov National University named by V.N. Karazin, Department of Physics and Technology*
*Svobody sq., 4, Kharkov, Ukraine, 61108*
Electromagnetic transition radiation by coherent nonrelativistic electron bunches on different electrodynamic heterogeneities are experimentally studied in the paper. It was shown that transition radiation spectra considerably effected by rapidity of reorientation of conduction electron movement direction, which can be observed during passage of bunches through diaphragms. Spiral structures were used to enlarge power of transition radiation. The average power for superposed electric and magnetic dipoles more than 10 times exceeded the average power on the system of diaphragms.
**KEY WORDS:** electron bunch, transition radiation, diaphragm, spiral, electromagnetic pulse.

## ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНЕ ДОСЛІДЖЕННЯ ПЕРЕХІДНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ НЕРЕЛЯТИВІСТСЬКИМИ ЕЛЕКТРОННИМИ ЗГУСТКАМИ НА РІЗНИХ ЕЛЕКТРОДИНАМІЧНИХ НЕОДНОРІДНОСТЯХ

**С.С. Геращенко, В.І. Гриценко, В.І. Муратов, В.Д. Федорченко**
*Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна, фізико-технічний факультет*
*пл. Свободи, 4 Харків, 61022*
У роботі експериментально досліджується перехідне електромагнітне випромінювання когерентними нерелятивістськими електронними згустками на різних електродинамічних неоднорідностях. Показано, що істотний вплив на спектри перехідного випромінювання надає прудкість перебудови напряму руху електронів провідності, яка відбувається при прольоті через діафрагми. Для збільшення потужності перехідного випромінювання використовувалися спіральні структури. Для поєднаного електричного і магнітного диполя середня потужність більш ніж на порядок перевищувала середню потужність на системі діафрагм.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** електронний згусток, перехідне випромінювання, діафрагма, спіраль, електромагнітний імпульс.

Как хорошо известно, электромагнитное излучение (ЭМИ), генерируемое заряженными частицами, возможно не только при их ускоренном движении, но и при движении этих частиц с постоянной скоростью. Существенным условием возникновения излучения электромагнитных волн в этом случае является наличие материальных сред. Если заряженная частица движется прямолинейно и равномерно вблизи проводящей среды или влетает в нее, то она возбуждает в этой среде токи, изменяющиеся со временем. Наводимые токи порождают электромагнитное излучение. Движение с постоянной скоростью вблизи диэлектриков приводит к их локальной поляризации во времени и пространстве и, соответственно, к излучению электромагнитных волн, но уже с гораздо меньшими интенсивностями. Таким образом, электромагнитное излучение связано с перестройкой поля системы “заряженная частица - среда” [1 - 5].

В настоящее время большой интерес представляет создание мощных ЭМИ малой длительности. Одним из механизмов, на базе которого осуществляется излучение ЭМИ, является его генерация с помощью быстрой перестройки поля, происходящей в системе “заряженный сгусток электронов – проводящее твердое тело”, т.е. с помощью генерации переходного излучения (ПИ). Широкополосное переходное излучение планируется использовать в импульсной радиолокации и системах связи.

Основными задачами в данной работе являлись:

1) управление спектрами переходного излучения с использованием различных электродинамических структур;

© Geraschenko S.S., Gritsenko V.I., Muratov V.I., Fedorchenko V.D., 2012

2) исследование механизма переходного излучения на ограниченных электродинамических структурах;
3) исследование возможностей увеличения мощности электромагнитного излучения и уменьшения ширины электромагнитных импульсов.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Эксперимент проводился на установке, схематически изображенной на рис. 1. Через металлическую трубу диаметром 9 см, расположенную в однородном магнитном поле 400 Э, инжектируются два взаимопроникающих пучка электронов. Эмиттером первого пучка является таблетка гексаборида лантана диаметром 0,6 см, второго – танталовая спираль, пронизываемая электронами первого пучка. Скорости пучков составляют $3{,}3\cdot10^9$ и $3{,}6\cdot10^9$ см/ сек. Суммарный ток 40 – 50 мА. Рабочее давление в камере $2\cdot10^{-6}$ Торр.

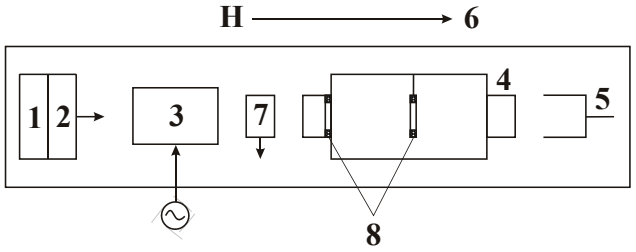



Рис 1. Блок-схема экспериментальной установки:
1, 2 – электронные пушки; 3 – модулятор; 4 – резонатор; 5 - коллектор; 6 –катушки магнитного поля; 7 – емкостный зонд; 8 – диафрагма.

Начальное возмущение создается подачей от внешнего генератора высокочастотного напряжения на модулятор (3, рис. 1), представляющей собой замедляющую спираль длиной 15 см, связанную с генератором через дополнительную спираль с обратной намоткой. Модулирующее напряжение на частотах 0,5 – 1,2 ГГц подается от генератора Г4 – 37 мощностью 1 ватт. За модулятором располагаются емкостной зонд (7, рис 1) и цилиндрический объемный резонатор (4, рис. 1) диаметром 3,5 см и длиной 6,8 см, с помощью которых измерялись частоты и мощность излучения.

В отсутствие модулирующего сигнала система двух электронных пучков была устойчивой, так как инжектировались в закритическом режиме [6,7]. Подача сигнала конечной амплитуды переводит систему в неустойчивое состояние. При этом наблюдался экспоненциальный рост неустойчивой волны по мере увеличения расстояния модулятор – зонд. Фазовая скорость, измеренная при различных скоростях пучков и частотах модуляции, составляла $(3 \div 4)\ 10^9$ см/ сек. При достижении определенной амплитуды волна захватывала электронные пучки и формировалась нелинейная волна Бернштейна-Грина-Крускала, после чего измерение фазовой скорости становилось невозможным. Оценка амплитуд захвата проводилась по формуле:

$$\varphi_0 \geq \frac{m}{2e}\left(v_b - v_\Phi\right)^2,$$

где $v_b$ - скорость пучка, $v_\Phi$ - фазовая скорость волны, $m$ и $e$ - масса и заряд электрона. При различных энергиях пучков и частотах модуляции $\varphi_0 \sim 10 - 15$ В.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

При определенном соотношении скоростей и токов пучков, т.е. при оптимальной функции распределения захваченных частиц емкостной зонд фиксирует широкополосный сигнал. Исследование гармонического состава этого сигнала проведено для различных частот модуляции. Анализатором спектра измерялись относительные амплитуды восьми гармоник. Затем была проведена калибровка высокочастотного тракта с помощью стандартных генераторов. Решая обратную задачу Фурье, можно определить форму потенциала сгустка, которая имеет вид узкого импульсов. Следует отметить, что при увеличении частоты модуляции полуширина импульса уменьшается. Так при частоте модуляции 670 МГц она составляет $\sim 2\cdot10^{-10}$ сек, при частоте модуляции 925 МГц - $10^{-10}$ сек.

Зная скорость сгустка, можно оценить его продольный размер, который составляет 0,3 см. Поперечный размер определяется диаметром катода и равен 0,6 см. Плотность частиц в сгустке $10^8$ см$^{-3}$, а полное число частиц $N = 4\cdot10^7$ [8].

Для проверки равновесия сгустков проводился следующий эксперимент. Вместо зонда был поставлен объемный резонатор, который мог перемещаться вдоль длины системы. Патрубок резонатора был затянут сеткой. Резонатор служил для диагностики переходного электромагнитного излучения, генерируемого сгустком на сетке. При этом резонатор возбуждался на собственных частотах, которые являются гармониками частоты модуляции. На частоте модуляции 1220 МГц была измерена амплитуда пятой гармоники в зависимости от расстояния модулятор – резонатор (рис. 2).

Видно, что при расстоянии $l \prec 12{,}5$ см возбуждение резонатора отсутствует, далее амплитуда гармоники возрастает и остается постоянной. Это означает, что после того как сгусток сформировался, он остается в равновесии на большой длине пролета (~ 30 см).

При пролете сгустка через различные электродинамические неоднородности генерируется

широкополосное переходное излучение.

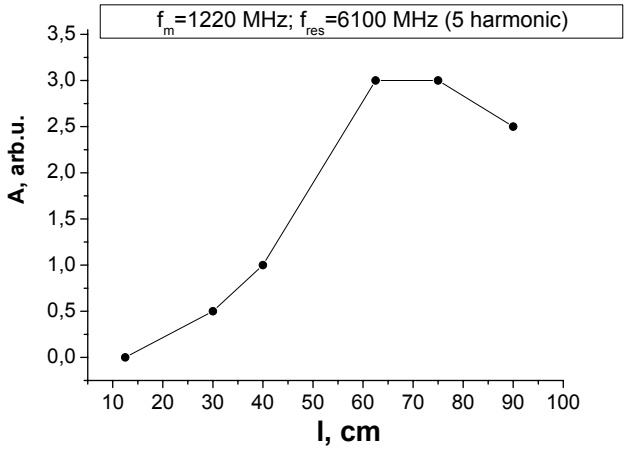



Рис 2. Зависимость амплитуды 5ой гармоники ( $f_{мод}$ = 1220 МГц) от расстояния модулятор – резонатор.

Переходя к экспериментам на диафрагмах [9], следует заметить, что на интенсивность и ширину спектра излучения большое влияние оказывает материал, из которого изготовлена диафрагма. Сравнение для двух геометрически идентичных медной и керамической диафрагм показывает, что спектр на керамической диафрагме ограничен наименьшей собственной частотой резонатора и интенсивность на медной диафрагме на два порядка больше, чем на керамической. Измерение спектров на диафрагме из ниобий – титанового сплава показывает, что они близки к спектрам на медной диафрагме.

Диафрагма располагалась как в центре, так и на входе резонатора. Для последнего случая исследовалась зависимость интенсивности излучения от радиуса отверстия тонкой ( $d$ = 0,2 см) диафрагмы при неизменном радиусе пучка 0,3 см. Измерения проводились на нижайшей моде с частотой 6,38 ГГц. Из рис.3 видно, что амплитуда излучения максимальна при радиусе отверстия близком к радиусу пучка и уменьшается с увеличением радиуса отверстия.

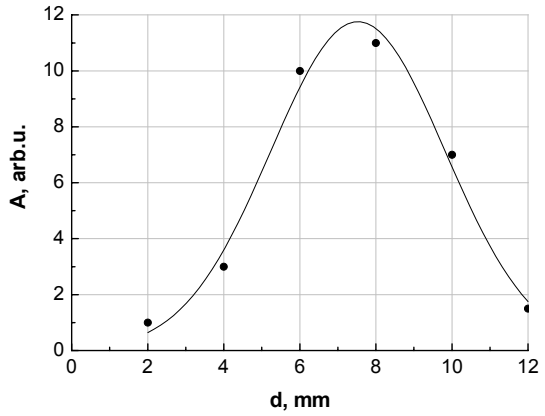



Рис. 3. Зависимость интенсивности амплитуды излучения от радиуса отверстия диафрагмы

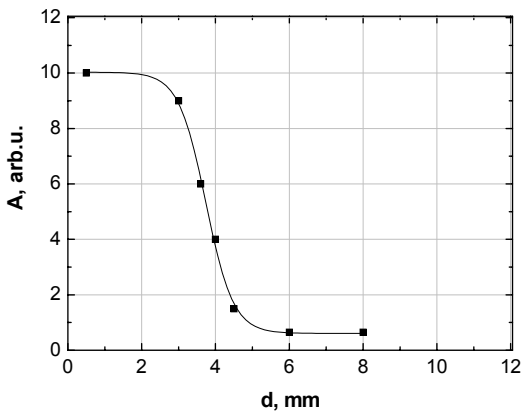



Рис. 4. Зависимость амплитуды излучения от толщины диафрагмы

Зависимость амплитуды излучения при оптимальном радиусе отверстия от толщины диафрагмы представлена на рис.4. Амплитуда переходного излучения резко спадает при увеличении толщины диафрагмы, практически исчезая при толщине сравнимой с её диаметром.

Спектры излучения для тонкой ( $d$ = 0,2 см) и толстой (0,6 см) диафрагм показаны на рис.5, из которого видно, что на тонкой диафрагме спектра расширяется до 30 Ггц, в то время как на толстой ограничивается 14 Ггц.

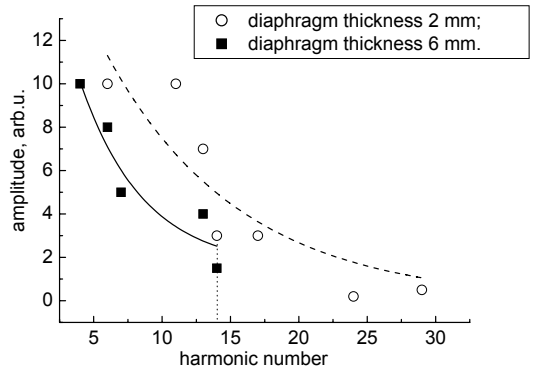



Рис.5. Спектры излучения для тонкой и толстой диафрагм

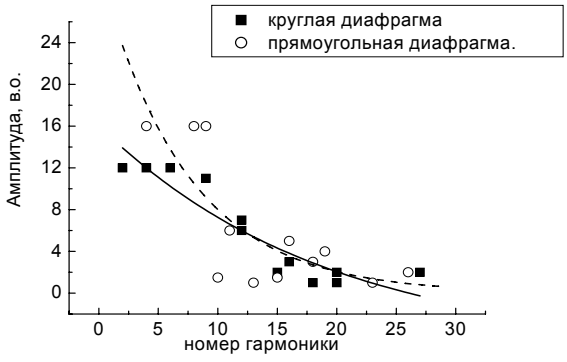



Рис.6. Спектры излучения на круглой и прямоугольной диафрагмах

На частоте модуляции 965 МГц были измерены спектры на круглой и прямоугольной диафрагмах одинаковой площади и толщины (рис.6). В частотном диапазоне до 7,5 ГГц амплитуда на прямоугольной

диафрагме больше, чем на круглой. Высокочастотная часть спектра практически совпадает для обеих диафрагм.

Несомненный интерес вызывает использование в качестве антенн – излучателей фрактальных диафрагм. Известно, что спектр переходного излучения при прохождении электронных сгустков через фрактальную электродинамическую систему, имеет самоподобную широкодиапазонную структуру. Получаемые при этом сигналы с фрактальными спектрами являются помехозащищенными и их можно использовать при решении проблем широкополосной локации и создания широкополосных систем связи.

В эксперименте были измерены спектры на прямоугольной медной диафрагме и ковре Серпинского (рис.7). Сравнивая спектры, можно сказать, что на ковре Серпинского наблюдается увеличение высокочастотных составляющих спектра переходного излучения и увеличение амплитуд в диапазоне 10 – 30 ГГц.

В одинаковых экспериментальных условиях были измерены также спектры на обычной круглой и модифицированной диафрагмах (рис.8 и 9). Спектр на фрактальной диафрагме расширяется в сторону высоких частот. К сожалению, удалось измерить только огибающую фрактального спектра, так как для исследования тонкой структуры необходим анализатор спектра с разрешением ~ 0,1 кГц.

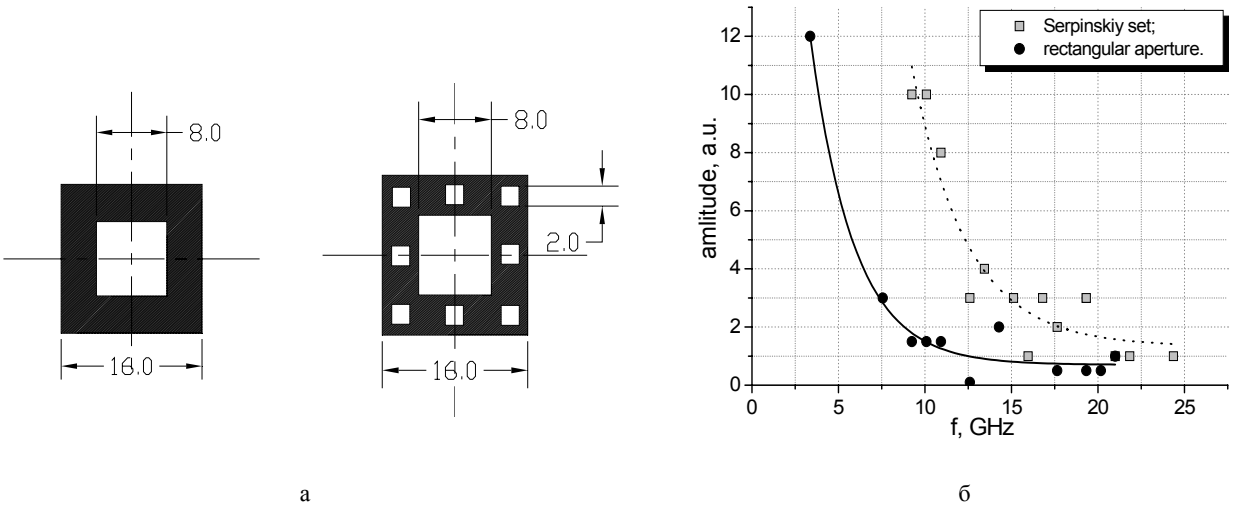



Рис.7. Спектры переходного излучения на прямоугольной медной диафрагме и ковре Серпинского:
а – диафрагмы; б – спектры.

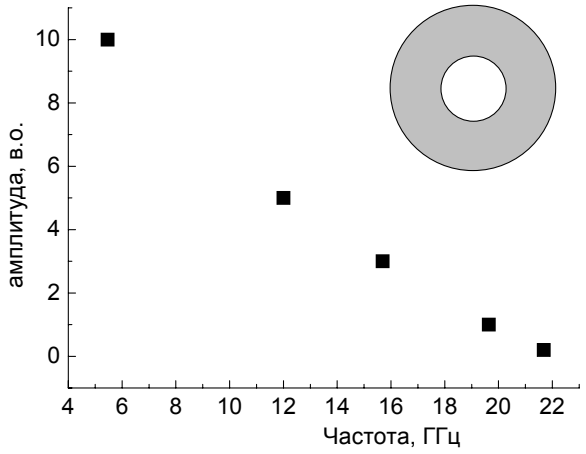



Рис.8. Спектр излучения на круглой диафрагме с отверстием.

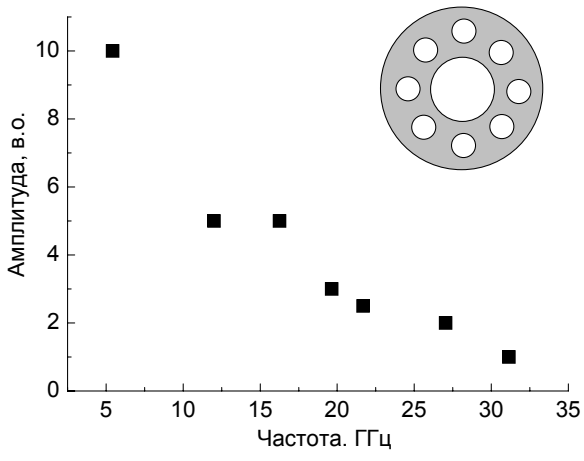



Рис.9. Спектр излучения на модифицированной диафрагме.

Таким образом, используя диафрагмы различных материалов, геометрий, можно управлять спектрами переходного излучения.

Экспериментально обнаружено увеличение мощности переходного излучения и существенную перестройку спектра при использовании комбинации диафрагм, расположенных на определенном расстоянии одна от другой в резонаторе. Это видно из рис.10, где приведены спектры излучения с одной диафрагмы (кривая 1) и с двух идентичных диафрагм, расположенных на расстоянии 3 мм одна от другой (кривая 2).

В одинаковых условиях эксперимента спектр на двух диафрагмах расширяется в сторону высоких частот и излучение имеет большую интенсивность по сравнению с одной диафрагмой.

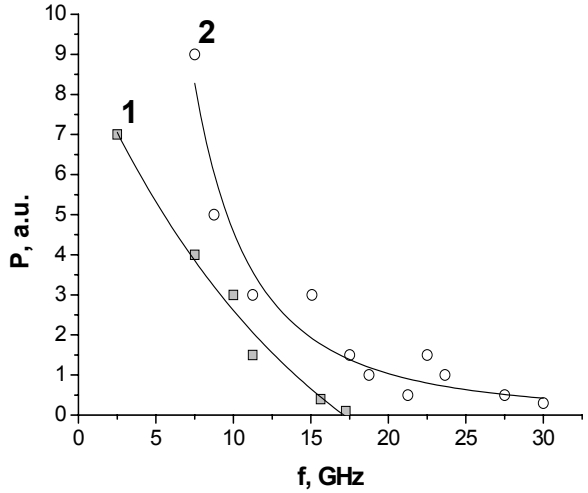



Рис.10. Спектры переходного излучения: 1 – для одной диафрагмы; 2 – для $2^x$диафрагм.

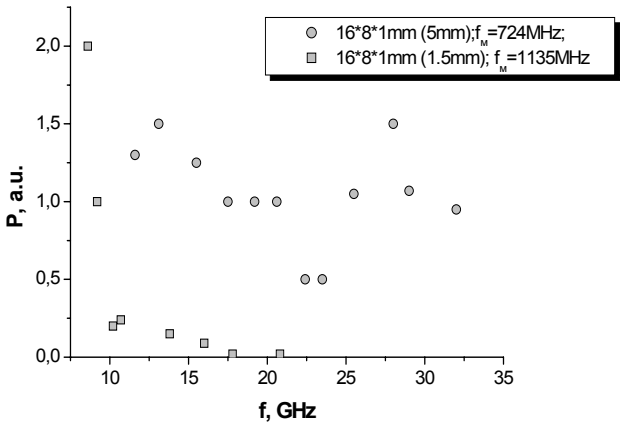



Рис.11. Спектры двух идентичных диафрагм, расположенных на расстоянии 1,5 мм и 5 мм одна от другой.

Оптимальным между диафрагмами является расстояние, сравнимое с продольным размером электронного сгустка. Длиной сгустка можно управлять частотой модуляции, так как последняя при постоянной скорости сгустка меняет время его пребывания между диафрагмами. На рис. 11 представлены спектры, измеренные на двух идентичных диафрагмах, расположенных на расстояниях 1,5 мм и 5 мм одна от другой.

В первом случае продольный размер сгустка больше зазора между диафрагмами, во втором – они близки друг к другу. Если продольный размер сгустка близок к расстоянию между диафрагмами, спектр расширяется до 32 ГГц и интенсивность излучения на высоких частотах увеличивается больше, чем на порядок.

Если сгусток электронов пролетает через две диафрагмы, то большое влияние на спектры переходного излучения имеет положение точек заземления каждой из диафрагм.

На рис.12 приведены две характерные возможности заземления диафрагм.

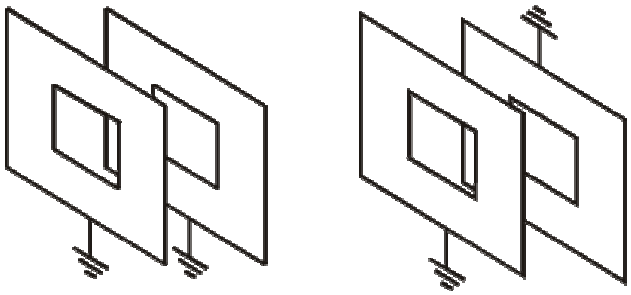



Рис.12. Квадратные диафрагмы
а) одностороннее заземление, б) разностороннее заземление.

Рассмотрим случай, когда диафрагмы заземлены в одну сторону (рис.12а). В этом случае влетающий в двойную систему сгусток электронов порождает движение электронов проводимости в направлении заземления сначала в первой диафрагме. При вылете сгустка электронов из первой диафрагмы в ней поверхностный ток проводимости изменяет свое направление движения на противоположное. В то же самое время во второй диафрагме ток электронов проводимости начал свое движение в направлении заземления. Таким образом, при пролете сгустка электронов между диафрагмами токи в диафрагмах компенсируют друг друга.

Если диафрагмы заземлены в разных направлениях (рис.12б), то токи в диафрагмах при пролете сгустка электронов между ними складываются. Эти изменения в поведении суммарной плотности токов электронов проводимости для разных случаев заземления диафрагм существенным образом влияют на характеристики спектров переходного излучения (рис.13).

Для понимания роли наведенных сгустком токов проводимости был поставлен эксперимент на прямоугольной медной диафрагме, которая в одном случае была заземлена, а в другом – изолирована от земли.

Сравнительные спектры излучения приведены на рис. 14. Видно, что на изолированной диафрагме спектр практически отсутствует за исключением трех низких частот малой амплитуды.

Кроме спектров, на двух диафрагмах, расположенных на оптимальном расстоянии одна от другой в резонаторе, термистерным мостом Я2М-64 измерялась средняя мощность излучения. Измерительной антенной служила цилиндрическая спираль, также расположенная в резонаторе на расстоянии 10 мм от диафрагм. Чтобы спираль не “чувствовала” сгустка в середине её поставлена медная трубка 10×8 (мм) длиной 25 мм на расстояние 8 мм от диафрагм. Измеренная таким образом средняя мощность на двух диафрагмах составила 15 мВт, на одной диафрагме – 1 мВт. Если убрать обе диафрагмы, сигнал с измерительной антенны отсутствовал.

Дальнейшие эксперименты были направлены на поиски более эффективных, чем диафрагмы, антенн-изхлучателей на базе других электродинамических структур. Исследовались широкополосные конусные спирали, цилиндрические спирали с различными длиной, шагом и внутренним диаметром, а также решетка,

свернутая в окружность. Измерения проводились как в резонаторе так и в вакуумной камере, где спирали размещались либо в металлических кожухах, либо без них.

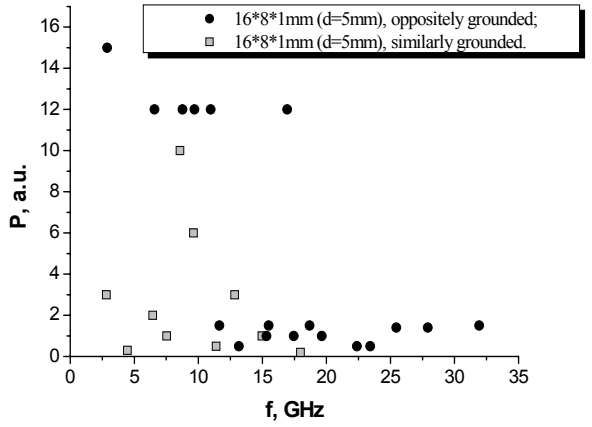



Рис.13.Спектры переходного излучения при заземлениях, изображенных на рис. 12.

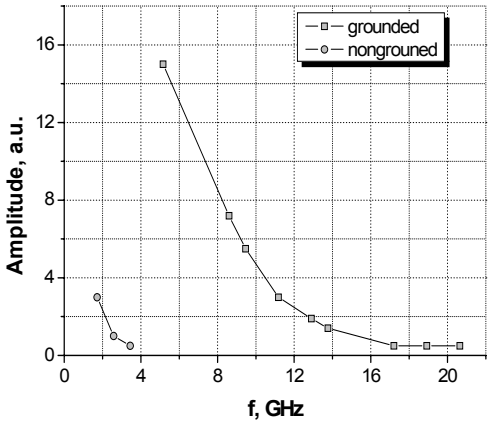



Рис.14. Спектры переходного излучения для изолированной и заземленной диафрагм.

Конусная спираль длиной 50 мм и шагом 10 мм располагалась в резонаторе из нержавеющей стали. Излучение с крайнего витка подавалось на ваттметр и анализатор спектра. Измерение средней мощности дало значение 150 мВт, что на порядок превышает мощность от двух диафрагм, спектр показан на рис. 15.

Аналогичные результаты (средняя мощность 150 мВт и похожие спектры) получены на двухзаходной спирали и решетке свернутой в окружность диаметром 20 мм так, чтобы сгусток пересекал витки. Если сгусток движется вдоль витков решетки, мощность излучения существенно уменьшается (до 10 мВт).

Остановимся подробнее на эксперименте с цилиндрическими спиралями. При постоянном внутреннем диаметре кожуха (47 мм) и диаметре сгустка (6 мм) были измерены средняя мощность и спектр излучения на спиралях, отличающихся только внутренним диаметром намотки (шаг 5 мм, длина 35 мм). Из рис. 16 видно, что излучаемая мощность на спиралях диаметром 12 и 21 мм одна и та же, вдвое уменьшается при диаметре 25 мм и практически равна нулю на диаметре 30 мм.

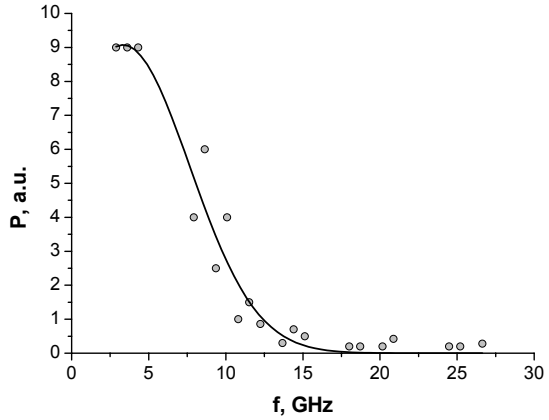



Рис.15. Спектр переходного излучения от внутреннего диаметра спирали.

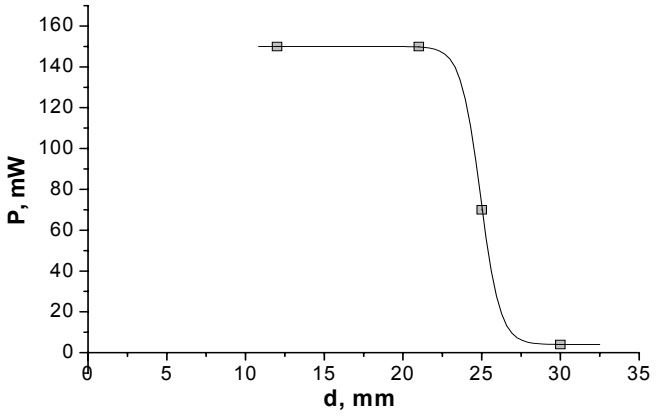



Рис.16. Зависимость мощности переходного излучения от внутреннего диаметра спирали.

Спектры в первых трех случаях содержат большое число гармоник частоты модуляции, в последнем – спектр практически отсутствует. Требовалось выяснить, с чем связано уменьшение мощности: с удалением спирали от сгустка или приближением её к кожуху. С этой целью спираль с внутренним диаметром 20 мм располагалась в кожухе 30 мм. Измеренная мощность увеличилась вдвое и составила 300 мВт.

В следующем эксперименте та же спираль помещена в медный резонатор с внутренним диаметром 35 мм. Средняя мощность возросла до 500 мВт, что связано с уменьшением потерь в торце.

Отсюда можно сделать вывод: с одной стороны, для увеличения генерируемой мощности необходимо оптимальное соотношение между радиусом сгустка и спирали (то же самое имело место в случае диафрагм), с другой – необходимо оптимальное удаление спирали от кожуха.

Экспериментально изучался высокочастотный трансформатор, вторичная обмотка которого- постоянная спираль диаметром 35 мм, шагом 5 мм и длиной 45 мм (35×5×45). С конечного витка этой спирали измерялась средняя мощность, генерируемая сгустком в изолированной первичной обмотке. Первичная обмотка – спирали с одинаковым диаметром (20 мм) и шагом (5 мм) и разной длиной $l$ (12, 15, 25, 30 и 45 мм). Оказалось, что максимальная мощность равная 750мВт, генерируется в том случае, когда первичной обмоткой является

спираль 20×5×15 (3 витка) (рис. 17).

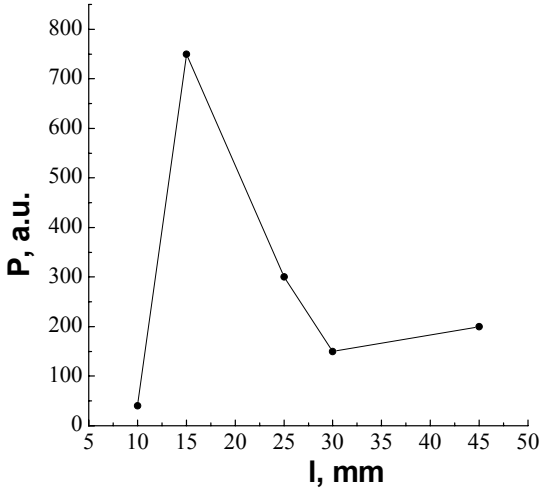
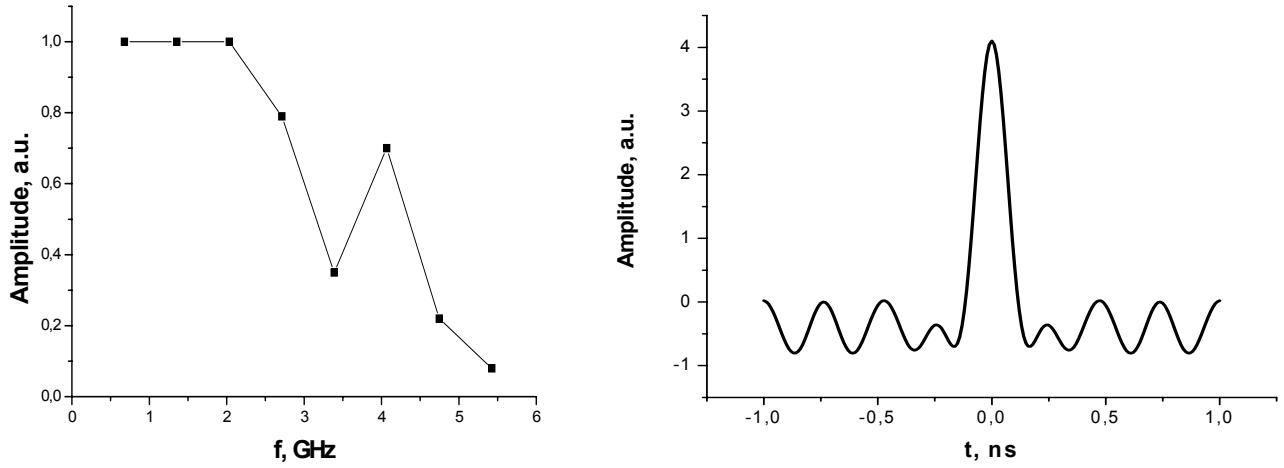



Рис. 17. Зависимость мощности переходного излучения от длины спирали в первичной обмотке.

Возбуждение диполя происходит на определенной частоте, когда длина провода намотки равна половинке длины волны. Известно, что кольцевой электрический ток создает по структуре такое же магнитное поле, какое электрическое поле создают два разноименных одинаковой величины электрических заряда (электрический диполь). Кольцевой электрический ток получил название магнитного диполя. Если по кольцу течет переменный электрический ток высокой частоты, то он вызывает электромагнитное излучение. Кольцевой высокочастотный ток будет называться элементарным магнитным излучателем, если кольцо плоское, периметр кольца очень мал по сравнению с длиной волны и ток имеет одинаковую амплитуду и фазу во всех точках кольца.

Обратимся к эксперименту. Короткая спираль 20×5×15 может считаться плоским кольцом, её периметр мал по сравнению с длиной волны. Таким образом, эта спираль является совмещенным электрическим и магнитным диполем. Чтобы убедиться в этом был поставлен следующий эксперимент. В системе поставлена изолированная спираль 20×5×15. Электрическим и магнитным зондами были измерены распределения полей вдоль длины спирали. В центре спирали наблюдается максимум магнитного поля и нуль электрического, которое в противофазе возрастает к конечным точкам спирали. Измеренный на этой спирали спектр переходного излучения представлен на рис.18.




а) б)

Рис.18. Спектр переходного излучения
а) - спектр с диполя; б) - форма электромагнитного импульса.

## ВЫВОДЫ

1. Существенное влияние на спектры переходного излучения оказывает быстрота перестройки направления движения электронов проводимости, которая происходит при пролете электронных сгустков через диафрагмы. Это означает, что с помощью материалов диафрагм и их геометрий можно управлять спектром переходного излучения. Расположение точек заземления диафрагм влияет на направление движения наведенных токов и, следовательно, на диаграмму направленности переходного излучения.
2. Для значительного увеличения интенсивности переходного излучения использовались спиральные электродинамические структуры. Для совмещенного электрического и магнитного диполя измеренная средняя мощность составляла 700 – 800 мВт, что более чем на порядок превышает среднюю мощность на системе диафрагм.
3. Уменьшение ширины электромагнитного импульса достигалось увеличением частоты модуляции. Кроме того, проведены предварительные эксперименты, показывающие, что ширину импульса можно значительно уменьшить, увеличивая высокочастотное напряжение, модулирующее электронные пучки.

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Ginzburg V.L., Frank I.M. Izluchenie ravnomerno dvizhushchegosya elektrona, voznikayushchee pri ego perekhode iz odnoy sredy v druguyu // Zhurn. eksp. i. teor. fiziki. – 1946.-T.16, №1.– S.15-28.
2. Ginzburg V.L. Teoreticheskaya fizika i astrofizika. –Moskva: Nauka, 1987. –488s.
3. Ginzburg V.L., Tsytovich V.N. Perekhodnoe izluchenie i perekhodnoe rasseyanie. –Moskva: Nauka, 1984. –360s.
4. Ter-Mikaelyan M.L. Vliyanie sredy na elektromagnitnye protsessy pri vysokikh energiyakh. – Erevan: Izd. AN Arm. SSR, 1969. –456s.
5. Kalmykova S.S., Kurilko V.I. Fizicheskie mekhanizmy kollektivnykh perekhodnykh neustoychivostey potokov zaryazhennykh chastits. –Kiev: Nauk. Dumka, 1989. –S.162-175.
6. Fedorchenko V.D., Mazalov Yu.P., Bakay A.S. Upravlenie profilem potentsial'nykh voln v mnogopotokovykh plazmennykh sistemakh // ZhETF. – 1979. – T.76. – S.107.
7. Bakay A.S., Krivulya S.S., Fedorchenko V.D., Muratov V.I. // Vozbuzhdenie voln v ogranichennoy plazme puchkom elektronov s zakriticheskoy skorost'yu // Pis'ma v ZhETF.-1975.-T. 21.-S. 226.
8. Bolotov V.N., Kononenko S.I., Muratov V.I., Fedorchenko V.D. Generation of non-relativistic electron bunches and measurement of their basic parameters // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. –2008. – Vol.A596. – P. 285-287.
9. Bolotov V.N., Kononenko S.I., Muratov V.I., Fedorchenko V.D. Perekhodnoe izluchenie nerelyativistskikh elektronnykh sgustkov na diafragmakh // ZhTF. –2004. -T.74. -Vyp. 4. - S. 89 – 94.

*УДК 539.216:519.876.5*

# АНОМАЛЬНЫЙ РОСТ ДИФФУЗИИ В ПРОСТРАНСТВЕННО-ПЕРИОДИЧЕСКИХ СИСТЕМАХ С МАЛОЙ ДИССИПАЦИЕЙ ЭНЕРГИИ

**И.Г. Марченко[1,2], И.И. Марченко[3]**
*[1]Национальний научный центр «Харьковский физико-технический институт»*
*ул. Академическая 1, г. Харьков 61108, Украина*
*E-mail: march@kipt.kharkov.ua*
*[2]Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина*
*пл. Свободы 4, г. Харьков, 61077, Украина*
*[3]НТУ «Харьковский политехнический институт*
*ул. Фрунзе 21, г. Харьков 61145 , Украина*
Received 6 July 2012, accepted 11 November 2012

В работе методами компьютерного моделирования исследована диффузия частиц в периодическом пространственном потенциале под воздействием внешней постоянной силы. Показано, что в отличие от передемпфированного случая, в системах с малой диссипацией энергии возникает новое значение критической силы связанное с появлением точки бифуркации типа “вилка”. В окрестности этой точки наблюдается экспоненциальный рост коэффициента диффузии с уменьшением температуры. При этом время установления стационарного распределения стремится к бесконечности при стремлении температуры к нулю.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** диффузия, компьютерное моделирование, кристаллы, уравнение Ланжевена

## АНОМАЛЬНЕ ЗРОСТАННЯ ДИФУЗІЇ У ПРОСТОРОВО-ПЕРІОДИЧНИХ СИСТЕМАХ З МАЛОЮ ДИСИПАЦІЄЮ ЕНЕРГІЇ

**І.Г. Марченко[1,2], І.І. Марченко[3]**
*[1]Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»*
*вул. Академична 1, м. Харків 61108, Україна*
*[2]Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна*
*пл. Свободи 4, м. Харків, 61077, Україна*
*[3]НТУ «Харківський політехнічний інститут*
*вул. Фрунзе 21, м. Харків 61145 , Україна*
У роботі методами комп’ютерного моделювання вивчена дифузія частинок у періодичному просторовому потенціалі під впливом зовнішньої незмінної сили. Показано, що на відміну від передемпфірованого випадку, у системах з малою дисипацією енергії виникає нове значення критичної сили, яке пов’язане з появою точки біфуркації типа “виделка”. Поблизу від цієї точки спостерігається експоненціальне зростання коефіцієнта дифузії із зменшенням температури. При цьому час встановлення стаціонарного розподілу спрямована до безкінечності при зменшенні температури до нуля.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** дифузія, комп’ютерне моделювання, кристали, рівняння Ланжевена

## ANOMALOUS GROWTH OF THE DIFFUSION IN SPACE-PERIODIC SYSTEMS WITH A LOW ENERGY DISSIPATION

**I.G. Marchenko[1,2] and I.I. Marchenko[3]**
*[1]National Scientific Center “Kharkiv Institute of Physics and Technology”*
*1, Akademicheskaia St., Kharkov, 61108, Ukraine*
*E-mail: march@kipt.kharkov.ua*
*[2]V.N. Karazin Kharkov National University*
*4 Svobody Sq., Kharkov, 61077, Ukraine*
*[3]NTU „Kharkov Polytechnic Institute”*
*21 Frunze St., Kharkov, 61145, Ukraine*
Computer simulation methods were used to investigate the particle diffusion in the periodic spatial potential under constant force exposure. The paper shows that, unlike a superdamped case, in the systems with weak energy dissipation a new critical force value arises due to the appearance of a fork-like bifurcation point. About this point an exponential growth of the diffusion coefficient with temperature decreasing is observed. It is noted that the time of transition to the steady-state distribution tends to infinity while the temperature tends to zero.
**KEY WORDS:** diffusion, computer simulation, crystals, Langevin equation

Диффузия частиц в периодических пространственных полях интенсивно исследуется в последнее время [1]. Эти исследования имеют не только общетеоретический, но и практический интерес. Изучение особенностей транспорта атомов и кластеров, различных дефектов кристаллической решетки, таких как междоузельные атомы, вакансии, дислокации и пр. во внешних полях представляются чрезвычайно важными для развития новых технологий. Кроме того, эта задача тесно связана с физическими процессами протекающими в контактах Джофсона, в системах фазовой автоподстройки частоты, в суперионных проводниках и пр. [2]. Особый интерес вызывает исследование направленного транспорта частиц под

© Marchenko I.G., Marchenko I.I., 2012

воздействием внешних полей (так называемых Броуновских моторов) [3].

Был достигнут значительный прогресс в аналитических исследованиях диффузии и транспорта частиц в передемфированном случае [4]. В то же время для систем с малой диссипацией энергии разработанные методы мало приемлемы. В связи с этим, наряду с аналитическими методами [5], интенсивно использовались методы компьютерного моделирования [6]. Было показано, что под воздействием постоянной силы могут возникать особые промежуточные во времени фазы диффузии: так называемые гипер - и субдиффузия [7].

Наличие таких особых режимов диффузии может приводить к аномальным температурным зависимостям коэффициента диффузии [8]. Вместе с тем, несмотря на достигнутый прогресс в компьютерном моделировании движения частиц в пространственно периодических потенциалах, недостаточное внимание было уделено изучению влияния температуры на интенсивность их диффузии.

Целью данной работы являлось исследование температурной зависимости диффузии частиц движущихся в периодическом потенциале под воздействием внешней силы в системах с малой диссипацией энергии.

## МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ

Движение частиц описывалось уравнениями Ланжевена. Для упрощения рассмотрен только случай одномерной диффузии в пространственно периодическом потенциале $U(x)$ :

$$m\ddot{x} = -\frac{\partial}{\partial x}U(x) - \gamma\dot{x} + F + \xi(t), \tag{1}$$

где $x$ – координата частицы на плоскости, $m$ - ее масса, $F$ – постоянная сила, действующая на частицу, $U(x)$ - потенциальная энергия частицы, $\gamma$ - коэффициент трения. Член $\xi(t)$ описывает термические флуктуации. Точка сверху означает дифференцирование по времени. Предполагается, что шум является белым и соответственно для термических флуктуаций выполняется соотношение

$$\langle \xi(t)\xi(t') \rangle = 2\gamma kT\delta(t-t'), \tag{2}$$

где $k$ - постоянная Больцмана, $T$ - температура.

Потенциальная энергия частицы задавалась следующим выражением:

$$U(x) = -\frac{U_0}{2}\cos\left(\frac{2\pi}{a}x\right), \tag{3}$$

где $a$ - постоянная одномерной решетки.

На движущуюся частицу действует периодическая в пространстве сила со стороны кристаллической решетки

$$F_{lat} = F_0 \sin\left(\frac{2\pi}{a}r\right), \tag{4}$$

где $F_0 = \frac{\pi}{a}U_0$. В качестве мигрирующей частицы был выбран атом водорода. Величина активационного барьера составляла 80 МэВ – величину характерную для диффузии по плотноупакованным поверхностям металлов. Постоянная решетки $a$ была равна 2Å. Стохастические уравнения (1)-(2) численно решались алгоритмом первого порядка по времени типа Верле [9], с шагом по времени $\Delta t \approx 0{,}1$ фс, что составляло менее 0,01 периода собственных колебаний. Известно, что явные одношаговые методы решения стохастических уравнений обладают хорошей сходимостью [10]. Как показали расчеты, численное решение является устойчивым при данном выборе шага.

Статистическое усреднение проводилось по ансамблю частиц с количеством $N = 4\cdot 10^4$. Для верификации результатов моделирования отдельные расчеты проводились с $N = 4\cdot 10^6$. Начальные условия задавались следующим образом. Частица помещалась в начале координат с минимальной потенциальной энергией. Ей случайным образом сообщалась скорость, имеющая Максвеловское распределение по температуре. После чего проводилась термализация системы в течение $10^4$ шагов. Затем частицу с установившейся на данный момент скоростью перемещали в первую элементарную ячейку одномерной решетки.

При анализе результатов моделирования удобно перейти к безразмерным величинам времени $t'$, расстояния $x'$ и температуры $T'$ [2,6]:

$$t' = t\frac{1}{a}\sqrt{\frac{U_0}{m}}; \quad x' = \frac{x}{a}; \quad T' = \frac{Tk}{U_0}. \tag{5}$$

Тогда безразмерный коэффициент трения будет равен

$$\gamma' = \frac{\gamma a}{(mU_0)^{1/2}}. \qquad (6)$$

Коэффициент диффузии представляет собой дисперсию в распределении ансамбля движущихся частиц при стремлении времени к бесконечности [4]:

$$D = \lim_{t\to\infty} D_{ef}(t) = \lim_{t\to\infty} \frac{\left\langle \left(x_i - \langle x_i \rangle\right)^2 \right\rangle}{2t} = \lim_{t\to\infty} \frac{\sigma^2}{2t}. \qquad (7)$$

Поскольку любой компьютерный расчет ограничен во времени, определению (7) требуется придать количественное определение. В противном случае можно иметь дело с артефактами связанными с тем, что не достигнут режим “нормальной” диффузии. На рис. 1 приведены характерные графики зависимости дисперсии $\sigma^2$ частиц от времени для различных температур.

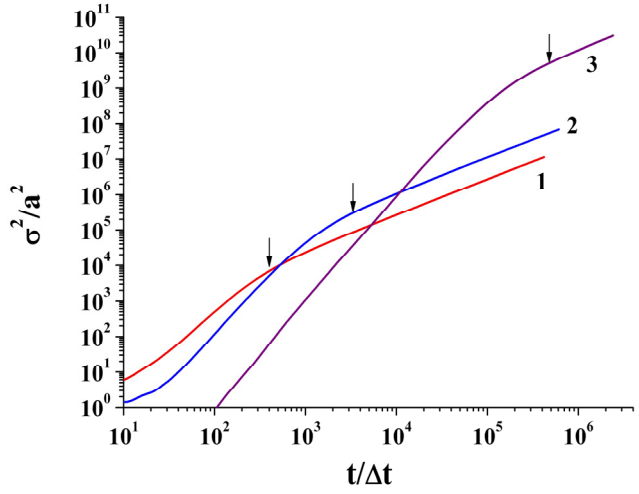



Рис. 1. Временная зависимость среднеквадратичных отклонений частиц от времени.
1- T=720K ($T'$=0,78), 2 – T=240K ($T'$=0,26), 3- T=90K ($T'$=0,097). $\gamma' = 0{,}141$, $F = F_{D_{mx}} = 0{,}097F_0$.

Величина внешней силы $F = F_{D_{mx}}$ соответствовала значению, при котором коэффициент диффузии достигал своего максимума. Стрелками на рисунке отмечены участки окончания переходных процессов и установления линейной зависимости дисперсии от времени. Как видно фаза обычной диффузии, характеризуемая зависимостью $\sigma^2 \sim t$, при температуре 720K ($T' = 0{,}776$) устанавливается после момента времени $t_{ctn} \approx 10^3 \Delta t$, где $\Delta t$ - шаг по времени. Уменьшение температуры приводит к существенному возрастанию значения $t_{ctn}$. Так при температуре 90K ($T' = 0{,}094$) $t_{ctn} \approx 10^6 \Delta t$. Вследствие этого в каждом расчете коэффициент диффузии $D$ находился как коэффициент пропорциональности между дисперсией и временем на установившейся стадии диффузии. Он вычислялся путем подгонки данных компьютерного моделирования линейной зависимостью $\sigma^2 \sim t$ по методу наименьших квадратов. Ошибка подгонки во всех расчетах не превышала 0,02%.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведены графики зависимости коэффициентов диффузии от величины постоянно действующей силы $F$ для различных значений температуры.

Как видно из рисунка графики ведут себя одинаковым образом во всем исследованном диапазоне температур. Все кривые имеют максимум при значении силы $F = 0{,}098F_0$. Уменьшение температуры приводит к возрастанию максимальной величины коэффициента диффузии $D_{\max}$ при фиксированном значении силы. Такое поведение диффузии является крайне необычным. Впервые существование подобной аномальной зависимости было отмечено в работе [11]. Авторы экстраполировали температурную зависимость $D_{\max}$ как: $D_{\max} \sim T^{-3,5}$. Эта зависимость на рис. 3 представлена пунктирной линией. Так же на этом рисунке маркерами приведено изменение величины $D_{\max}$ с температурой для двух различных значений коэффициента трения $\gamma'$. Как следует из рис. 3, функциональное поведение $D_{\max}(T)$ существенно отличается от аппроксимации, предложенной в работе [11]. Данный факт, очевидно, связан с достаточно узким диапазоном температур, исследованных в этой работе. Полученные данные относятся к диапазону температур $T' = 0{,}15 - 0{,}25$. Из рис. 3 видно, что в этом диапазоне температур такая аппроксимация действительно хорошо соответствует результатам моделирования. В то же время, она существенно расходится для значений температур выше и ниже этого интервала.

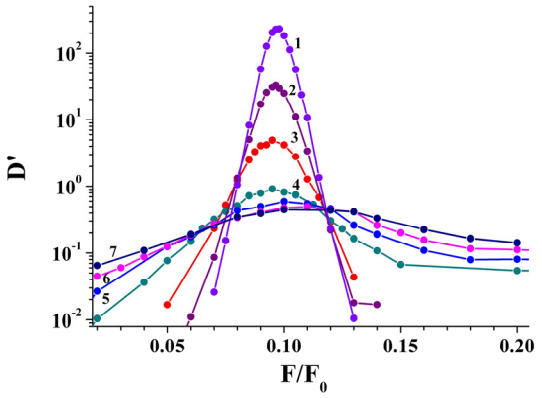



Рис. 2. Зависимости коэффициентов диффузии от величины постоянно действующей силы $F$ для различных значений температуры. Коэффициент трения $\gamma' = 0{,}141$.

1- T=90 ($T^{'}$=0,097), 2- T=120 ($T^{'}$=0,129), 3- T=180 ($T^{'}$=0,194), 4- T=360 ($T^{'}$=0,388), 5- T=540 ($T^{'}$=0,582), 6- T=720 ($T^{'}$=0,776), 7 - T=900 ($T^{'}$=0,969).

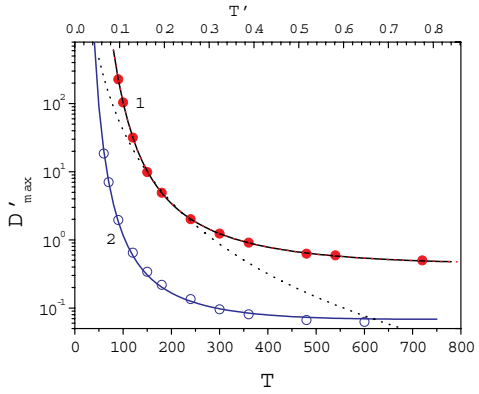



Рис. 3. Температурные зависимости максимального коэффициента диффузии для двух различных значений коэффициента трения.

1- $\gamma' = 0{,}141$, 2- $\gamma' = 0{,}707$. Маркеры – данные компьютерного моделирования, сплошные линии - аппроксимационные кривые (8). Штриховая линия – зависимость предложенная в работе [11].

В результате анализа более широкого массива данных компьютерного моделирования в данной работе была выбрана следующая аппроксимирующая функция:

$$D_{\max} = D_0 \exp(\varepsilon / kT) T^{2/3}. \qquad (8)$$

На рис. 3 маркерами приведены результаты моделирования, а непрерывными линиями - апроксимационные кривые для значений $\gamma' = 0{,}141$ и $\gamma' = 0{,}707$. Как следует из рисунка, данная функция хорошо описывает полученные в компьютерном эксперименте данные в исследованном диапазоне $\gamma'$. В таблице 1 приведены значения параметров апроксимационной формулы. Из данных таблицы видно, что с уменьшением коэффициента трения возрастает как величина $\varepsilon$, так и $D_0$.

Так же в таблице 1 приведены значения силы $F_{mx}$ при которой наблюдается максимальное значение коэффициента диффузии при выбранном значении коэффициента трения. Как следует из полученных данных, уменьшение величины $\gamma'$ приводит и к уменьшению $F_{mx}$.

| $\gamma'$ | $F_{mx}/F_0$ | $\varepsilon/U_0$ | $D_0^{'}$ |
|---|---|---|---|
| 0,141 | 0,098 | 0,833 (0,0666 эВ) | $2{,}09\cdot10^{-3}$ |
| 0,707 | 0,395 | 0,519 (0,0415 эВ) | $4{,}38\cdot10^{-4}$ |

Поведение графиков на рис. 2 показывает, что в независимости от температуры, существует некоторое критическое значение силы, при котором достигается максимальное значение коэффициента диффузии. В работах [4,12] было исследовано поведение D вблизи особой точки $F = F_0$ для так называемого передемпфированного случая. Он, в отличие от рассматриваемого в данной работе случая малых значений коэффициента трения, реализуется для больших значений $\gamma'$, когда инерционным членом в левой части уравнения (1) можно пренебречь.

Для передемпфированной частицы, на которую действует внешняя сила, в рельефе потенциальной энергии решетки существуют две критические точки на координатной оси $x$ [4,13]. Одна устойчивая – соответствует минимальной потенциальной энергии частицы в рельефе потенциальной энергии (так называемый узел). Вторая – неустойчивая, соответствующая максимуму потенциальной энергии (седловая точка). Из седловой точки частица может “скатиться” в одну из соседних элементарных ячеек. Положение этих точек на координатной оси зависит от внешнего параметра – постоянно действующей силы $F$. С увеличением значения $F$ расстояние между этими точками уменьшается. А при критическом значении $F = F_0$ эти две точки сливаются (так называемая тангенциальная бифуркация или бифуркация седло–узел). При дальнейшем увеличении F устойчивое решение (по $x$) отсутствует.

В работе [4] было показано, что при фиксированной температуре для передемпфированого случая при приближении силы к значению $F_0$ происходит возрастание коэффициента диффузии. Для синусоидального периодического потенциала максимальный коэффициент диффузии (соответствующий силе $F_{mx} = F_0$) должен возрастать с температурой как $T^{\frac{1}{3}}$. Вместе с тем из полученных в данной работе данных (см. уравнение (8))

следует совершенно иная функциональная зависимость. Для верификации модели нами были проведены расчеты для случая больших значений $\gamma'$. Расчеты показали что при $\gamma' > 7$ данные моделирования хорошо аппроксимируются зависимостью $D_{\max} = D_0 T^{\alpha}$. При $\gamma' \approx 7$ значение коэффициента $\alpha \approx 0,36$, что близко к значению $\alpha = 1/3$ теоретически предсказанному для передемпфированного случая. Это свидетельствует о том, что используемая компьютерная модель правильно отражает физику процесса диффузии частиц, и в случае малых значений $\gamma'$ мы имеем дело с ситуацией существенно отличной от рассмотренной в работе [4].

Как следует из данных таблицы 1, критическая точка $F_{mx}$ имеет значительно меньшее значение чем $F_0$, как следовало бы из работ [4,12]. Кроме того, коэффициент диффузии в окрестности $F_{mx}$ не уменьшается, а возрастает с понижением температуры.

Как следует из (8) при стремлении температуры к нулю наблюдается экспоненциальная расходимость коэффициента диффузии. Вместе с тем и время установления стационарного состояния при этом так же стремится к бесконечности, как видно из рис. 1. В свете этого исследование области низких температур методами компьютерного эксперимента проблематично для существующих вычислительных возможностей. Для решения этой задачи необходимо привлечения аналитических методов.

Различие в функциональной зависимости $D_{\max}(T)$, полученное в данной работе, от рассмотренного передемпфированного случая связано с различной природой критических точек, возникающих в этих двух случаях. В случае нулевой температуры в передемпфированном случае при $F_{mx} = F_0$ наблюдается тангенциальная бифуркация, которая не зависит от начальных значений импульса частицы. В случае же малых $\gamma'$ наблюдается бифуркация удвоения (или типа “вилка”).

Как хорошо известно, при малой диссипации энергии в системе с периодическим потенциалом возможны два типа решений: так называемые локализованные и бегущие решения [2]. На рис. 4 приведены численные решения уравнений движения для различных начальных условий. Частица, на которую действовала постоянная во времени внешняя сила $F$, в момент времени $t = 0$ находилась в точке с минимальной потенциальной энергией. В зависимости от начального импульса $P_0 = mV_0$, частица с течением времени либо переходит в связанное состояние (кривая 1), либо совершает осциллирующие движение и движется со средней во времени скоростью $\overline{V_F} = \dfrac{F}{\gamma}$ (кривые 2 и 3). Стационарная скорость движения $\overline{V_F}$ соответствует движению свободной частицы в вязкой среде под воздействием внешней силы $F$. Как видно из рисунка, существует критическое значение начального импульса $P_{cr}$. При $P_0 < P_{cr}$ частица переходит в связанное состояние, а при $P_0 > P_{cr}$ возникает устойчивое бегущее решение. Видно, что отклонение начального импульса в большую или меньшую сторону не сказывается на стационарном бегущем решении. Значение $P_{cr}$ зависит от величины $F$. На рис. 5 показана диаграмма существования связанных и локализованных решений в зависимости от величины действующей силы $F$. При значении $F$ меньше чем некоторое критическое значение $F_{cr1}$ в системе возможно только одно локализованное решение. При $F > F_{cr1}$ возникают два устойчивых решения: локализованное и бегущее. Стрелками на рисунке показано стремление частицы с произвольными начальным импульсом к стационарному во времени решению.

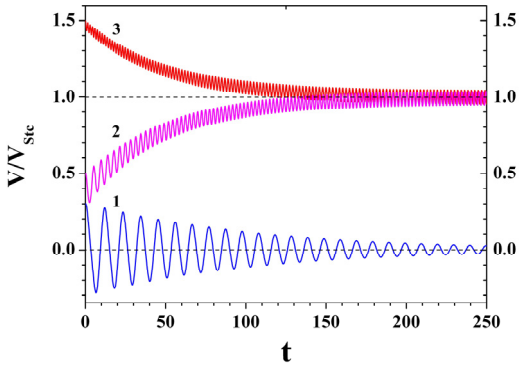



Рис. 4. Изменение во времени скорости частицы при различных начальных импульсах $P_0$.
$\gamma' = 0,141$, $F = 0,15F_0$, T=0. 1- $P_0 = 0,3mV_{stc}$, 2- $P_0 = 0,5mV_{stc}$, 3 - $P_0 = 1,5mV_{stc}$.

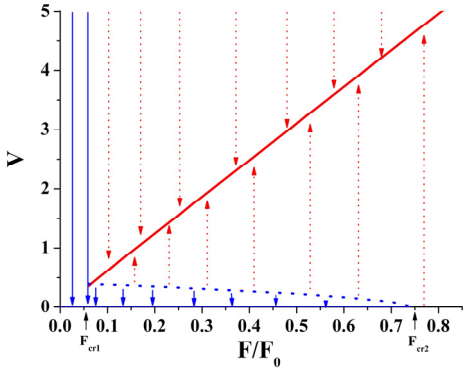



Рис. 5. Диаграмма существования связанных и локализованных решений в зависимости от величины действующей силы $F$. $\gamma' = 0,141$.
Стрелками на рисунке показано стремление частицы к стационарному во времени решению. Сплошные линии – бегущее решение, пунктирные линии – локализованное решение.

Таким образом, как видно из рис. 5, при изменении внешней силы в точке $F = F_{cr1}$ происходит бифуркация типа “вилка”, когда вместо одного устойчивого решения возникает два устойчивых решения. Это так называемый суперкритический случай бифуркации “вилки”. При дальнейшем росте $F$ вплоть до значения $F = F_{cr2}$ два решения сосуществуют. Однако, с увеличением силы, область существования связанного решения сужается. И при значении $F = F_{cr2}$ реализуется субкритический случай бифуркации “вилки”, когда из двух устойчивых решений остается только одно.

Под воздействием теплового шума частицы могут получать дополнительный импульс и переходить в окрестность другого устойчивого решения. Эта ситуация существенно отличается от рассмотренной в работах [4,12], где тепловые флуктуации приводили лишь к “перебросу” частиц за критическое значение силы. Качественно эта ситуация хорошо описана в книге [2].

Таким образом, как следует из данных компьютерного моделирования, при воздействии на систему находящуюся в контакте с тепловым резервуаром внешней силы $F_{cr1} < F < F_{cr2}$, частицы разбиваются на 2 популяции. Это частицы связанные с узлами решетки и “надбарьерные”, движущиеся в вязкой среде с энергией большей, чем энергия связи с узлом решетки. На рис. 6 приведены графики функции распределения частиц по скоростям $N(V)$ для различных значений $F$ при фиксированной температуре $T = 120K$. Графики строились при достижении ансамблем невзаимодействующих частиц стационарного состояния, когда $N(V)$ не изменялось со временем. Как следует из рисунка, в окрестности критической точки происходит существенное изменение $N(V)$ и часть частиц переходят из связанного состояния в надбарьерное. В то время как при $F/F_0 = 0{,}08$ основное количество частиц связано с узлами решетки, при $F/F_0 = 0{,}10$ большая часть ансамбля частиц связана с бегущим решением. Если снова возвратится к рис. 2, то видно, что такое перераспределение связано с существенным изменением коэффициента диффузии.

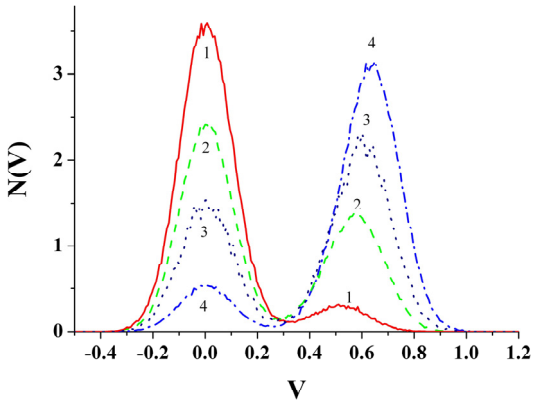



Рис. 6. Функции распределения по скоростям для частиц под воздействием постоянной силы F.
1 - $F = 0{,}08F_0$, 2 - $F = 0{,}09F_0$, 3 - $F = 0{,}095F_0$, 4 - $F = 0{,}10F_0$. T=120K ($T^{'}$=0,13), $\gamma' = 0{,}141$.

## ВЫВОДЫ

Таким образом, в данной работе методом компьютерного моделирования исследована температурная зависимость диффузии в ансамбле невзаимодействующих частиц, движущихся под воздействием внешней постоянной силы $F$ в периодических структурах с малой диссипацией энергии. Показано, что при определенных значениях $F$ наблюдается аномальная температурная зависимость диффузии: диффузия возрастает с уменьшением температуры. Предложена аппроксимационная формула, описывающая эту зависимость. Показано что со стремлением температуры к нулю коэффициент диффузии экспоненциально возрастает. Такое поведение связано с существованием бифуркации “вилки” для решения движения частиц под воздействием внешней силы. Аномальная температурная зависимость наблюдается в окрестности точки бифуркации.

В заключение авторы выражают благодарность Пархоменко А.А. за полезные обсуждения.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hänggi P., Marchesoni F. Artificial Brownian motors: Controlling transport on the nanoscale // Rev. Mod. Phys.- 2009.- Vol. 81.- P. 337-442.
2. Risken H. The Fokker-Planck equation and methods of solution and applications. - Springer, 1989.- 485p.
3. Machura L., Kostur M., Talkner P., et. al. Brownian motors: Current fluctuations and rectification efficiency // Phys. Rev.- 2004.- Vol. E70.- P. 061105 (8 pp.).
4. Reimann P., Van den Broeck C., Linke H., Hänggi P., Rubi J.M., Perez-Madrid A. Diffusion in tilted periodic potentials: Enhancement, universality, and scaling // Phys. Rev.- 2002.- Vol. E 65.- P. 031104 (16 pp.).
5. Coffey W.T. Kalmykov Yu.P., Waldron J.T. The Langevin equation. - Singapore: World Scientific publishing, 2004.- 678 p.
6. Sancho J.M., Lacasta A.M. The rich phenomenology of Brownian particles in nonlinear potential landscapes // Eur. Phys. J. Special Topics. - 2010.- Vol.187.- P. 49–62.
7. Lacasta A.M., Sancho J.M., Romero A.H., Sokolov I.M., Lindenberg K. From subdiffusion to superdiffusion of particles on solid surfaces // Phys. Rev. - 2004. - Vol. E70. - P. 051104 (10 pp.).
8. Marchenko I.G., Marchenko I.I. Anomalous Temperature Dependence of Diffusion in Crystals in Time-Periodic External Fields

// JETP Letters.- 2012.- Vol. 95, №3. - P. 137–142.
9. Verlet L. Computer "Experiments" on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules // Phys. Rev. - 1967.- Vol. 159.- P. 98 – 103.
10. Kuznetsov D.F. Stokhasticheskie differentsial'nye uravneniya: teoriya i praktika chislennogo resheniya. - Sankt-Peterburg: Politekhnicheskiy universitet, 2007.- 769 s.
11. Lindenberg K., Lacasta A.M., Sancho J.M., Romero A.H. Transport and diffusion on crystalline surfaces under external forces // New Journal of Physics. - 2005.- Vol. 7.- P. 29 (19 pp.).
12. Reimann P., Van den Broeck C., Linke H., Hänggi P., Rubi J.M., Pérez-Madrid A. Giant Acceleration of Free Diffusion by Use of Tilted Periodic Potentials // Phys. Rev. Lett.- 2001.- Vol. 87.- P. 010602 (4 pp.).
13. Strogatz S. H. Nonlinear Dynamics And Chaos. - Massachusetts: Perseus Books Publishing L.L.S., 1994.- 498 p.

УДК 53.092; 538.93; 542.61

# МАТЕРИАЛЫ И ПРОБОПОДГОТОВКА ДЛЯ МОДЕЛИРОВАНИЯ СВЕРХКРИТИЧЕСКОЙ ФЛЮИДНОЙ ЭКСТРАКЦИИ УРАНА В СРЕДЕ ДИОКСИДА УГЛЕРОДА

**Б.В. Борц[1], И.Г. Гончаров[1], А.В. Мазилов[1], С.Ф. Скоромная[1], В.И. Ткаченко[1,2]**
[1)] *ННЦ "Харьковский физико-технический институт"*
*Украина, г. Харьков, ул. Академическая, 1, 61108*
*E-mail: borts@kipt.kharkov.ua*
[2)] *Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина*
*Украина, г. Харьков, пл. Свободы, 4, 61022*
*E-mail: tkachenko@kipt.kharkov.ua*
Received 19 October 2012, accepted 16 November 2012

Дано описание установки сверхкритической флюидной экстракции комплексов урана в среде диоксида углерода, а также измерительного оборудования для проведения анализа исследуемых материалов. Описан метод отбора гранитов, которые используются для моделирования материалов отвалов техногенных месторождений или отработавшего ядерного топлива атомных реакторов. Дано описание метода пробоподготовки и анализа экстракта на содержание урана. На примере марок гранитов с повышенным содержанием урана показано, что методы отбора образцов исходного материала и пробоподготовки могут быть использованы для моделирования сверхкритической флюидной экстракции диоксидом углерода комплексов урана из материалов атомной энергетики.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** установка сверхкритической флюидной экстракции, метод отбора гранитов, метод пробоподготовки, сверхкритическая флюидная экстракция.

## MATERIALS AND SAMPLE PREPARATION FOR SIMULATION OF SUPERCRITICAL FLUID EXTRACTION OF URANIUM IN CARBON DIOXIDE MEDIUM

**B.V. Borts[1], I.G Goncharov[1], A.V. Mazilov[1], S.F. Skoromnaya[1], V.I. Tkachenko[1, 2]**
[1)] *National Science Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology"*
*1, Akademicheskaya St., Kharkov, Ukraine*
[2)] *V.N. Karazin Kharkiv National University*
*4, Svobody Sq., Kharkov, Ukraine, 61022*
A description of the installation for the supercritical fluid extraction of uranium complexes in the carbon dioxide medium, as well as instrumentation for the analysis of the test materials are presented. A method of selection of granites, which are used to modeling the material of technogen dumps of nuclear power or nuclear fuel of nuclear reactors are described. A description of the method of sample preparation and analysis of extracts on maintenance of the uranium are presented. On the example of the different kinds of granites with elevated content of the uranium it is shown that the methods of sampling and sample preparation of the starting material can be used for modeling of supercritical fluid extraction with carbon dioxide complexes of uranium from materials of nuclear power.
**KEY WORDS:** installation of supercritical fluid extraction, method for the selection of granites, sample preparation method, supercritical fluid extraction.

## МАТЕРІАЛИ І ПРОБОПІДГОТОВКА ДЛЯ МОДЕЛЮВАННЯ НАДКРИТИЧНОЇ ФЛЮЇДНОЇ ЕКСТРАКЦІЇ УРАНУ В СЕРЕДОВИЩІ ДІОКСИДУ ВУГЛЕЦЮ

**Б.В. Борц[1], І.Г. Гончаров[1], О.В. Мазілов[1], С.Ф. Скоромна[1], В.І. Ткаченко[1,2]**
[1] *ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут»,*
*Україна, м. Харків, вул. Академічна, 1, 61108*
[2] *Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна,*
*Україна, м. Харків, пл. Свободи, 4, 61022*
Дано опис установки надкритичної флюїдної екстракції комплексів урану в середовищі діоксиду вуглецю, а також вимірювального устаткування для проведення аналізу досліджуваних матеріалів. Описано метод відбору гранітів, які використовуються для моделювання матеріалів відвалів техногенних родовищ або відпрацьованого ядерного палива атомних реакторів. Дано опис методу пробопідготовки і аналізу екстракту на вміст урану. На прикладі марок гранітів з підвищеним вмістом урану показано, що методи відбору зразків вихідного матеріалу і пробопідготовки можуть бути використані для моделювання надкритичної флюїдної екстракції діоксидом вуглецю комплексів урану з матеріалів атомної енергетики.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА**: установка надкритичної флюїдної екстракції, метод відбору гранітів, метод пробопідготовки, надкритична флюїдна екстракція

Неводные, "сухие" методы экстракции, создающие минимальное количество жидких отходов, являются в последнее время предметом пристального интереса исследователей. Одним из таких методов является сверхкритическая флюидная экстракция газами ($CO_2$, метан, этан, пропан, этилен, пропилен, фреоны) и жидкостями (метанол, этанол, ацетон, аммиак), которые характеризуются приемлемыми критическими

© Borts B.V., Goncharov I.G., Mazilov A.V., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I., 2012

температурой и давлением [1]. На фоне перечисленных сверхкритических флюидов особняком выделяется сверхкритическая вода, также являющаяся хорошим растворителем. Однако, ее критические параметры достаточно высоки (критическая температура 373,9 ºС, критическое давление 220,6 МПа), и для реализации такой технологии необходимо решать сложные технические задачи.

Сверхкритическая флюидная экстракция — процесс перевода одного или нескольких предварительно подготовленных материалов в твердой или жидкой фазе в «сверхкритический газ» - флюид. Этот процесс происходит при контактировании смеси разделяемых материалов с растворителем (экстрагентом), который находится при температуре и давлении выше критических.

Использование в качестве экстрагента флюидов в сверхкритическом состоянии позволяет производить практически полную переработку исходного сырья в различных промышленных технологиях: фармацевтической, пищевой, парфюмерной, нефтехимической, и т.д.

В качестве экстрагентов наибольшее распространение получил $CO_2$ из-за его высокой растворяющей способности, дешевизны, доступности, нетоксичности и невысоких критических параметров (критическая температура 31,3 ºС, критическое давление 7,36 МПа).

Поскольку $CO_2$ является составляющей атмосферного воздуха, то он может быть изъят, а затем возвращен в атмосферу без каких либо последствия для экологии. Таким образом, сверхкритический $CO_2$ можно считать экологически чистым растворителем.

Сверхкритический $CO_2$ (СК – $CO_2$) характеризуется более низкой (на 1-2 порядка) вязкостью по сравнению с обычными жидкостями. Его коэффициент диффузии на 2-3 порядка больше, а плотность в несколько раз меньше, чем у обычной жидкости. Растворяющая способность СК – $CO_2$ сильно зависит от температуры и давления, что позволяет варьированием последних обеспечить селективную экстракцию, а также значительно сократить время экстракции.

В последнее время значительный интерес ученых прикован к исследованию СФЭ – $CO_2$ экстракции материалов атомной энергетики (МАЭ), куда следует отнести урансодержащие минералы, материалы, содержащиеся в хвостохранилищах урандобывающих производств, урановую руду, отработавшее ядерное топливо, радионуклиды, заражающие почву Чернобыльской зоны отчуждения (Украина) или зоны отчуждения АЭС Фукусима - 1 (Япония).

Поскольку работа с радиоактивными материалами сопряжена со значительными рисками, представляется интересным использовать в качестве материалов, моделирующих МАЭ, природные урансодержащие минералы. Как показано в работах [2-5], в качестве таковых возможно использовать различные марки гранитов, как наиболее доступные и характеризующиеся высокими уровнями концентрации урана. При этом необходимо из различных марок гранитов отбирать граниты, содержащие максимальное количество урана. В этой связи интересной представляется методика определения количества излучающих радионуклидов по гамма-спектрам. После отбора гранита ключевым элементом при проведении СФЭ – $CO_2$ экстракции является пробоподготовка, т.е. придание экстрагируемому материалу свойства растворяться в СК – $CO_2$.

Поэтому целью настоящей работы является описание методики определения количества излучающих радионуклидов по гамма-спектрам в исходном материале, а также методики пробоподготовки.

## ОПИСАНИЕ, ОБЩИЙ ВИД И ПОРЯДОК РАБОТЫ УСТАНОВКИ СФЭ-$CO_2$

СФЭ - $CO_2$ – экстракция комплексов урана проводилась на установке сверхкритической флюидной экстракции СФЭ - U, внешний вид которой и блок-схема приведен на рис. 1.2. соответственно. Установка позволяет поднимать давление СК - $CO_2$ до 20,0 МПа, и удерживать температуру СК - $CO_2$ до 50 ºС. Основные параметры установки приведены в таблице 1. Регулирование температуры и давления в разных местах установки обеспечивается цифровыми термостатами и баростатами, которые позволяют регулировать параметры системы в автоматическом, полуавтоматическом и ручном режимах.

При проведении экстракций был использован углекислый газ, отвечающий требованиям ГОСТ 8050-85, с объемным содержанием $CO_2$ 99,8 %.

На установке СФЭ - U экстракция выполнялась таким образом.

Через перепускной клапан (27) диоксид углерода из баллона (1) поступает на компрессор КПВ1А (2) и далее через влагомаслоотделитель (3) и клапаны (22, 23) поступает в ресивер (5). С помощью нагревателя ресивера (6), управляемого цифровым регулятором давления (11) и температуры (14) создается рабочее давление диоксида углерода. Достигнув параметров сверхкритического состояния, СК - $CO_2$ поступает в реактор (17) (в котором расположено определенное количество вещества, которое экстрагируется), где происходит процесс сверхкритической экстракции. Температура флюида в экстракторе измеряется хромель-алюмелевой термопарой (14), которая введена непосредственно в объем вещества, которое исследуется, через корпус реактора с использованием специального уплотнителя. Давление СК - $CO_2$ в экстракторе измеряется образцовым манометром класса точности 0,2, а также цифровым баростатом, который управляет, с датчиком Honeywell (USA).

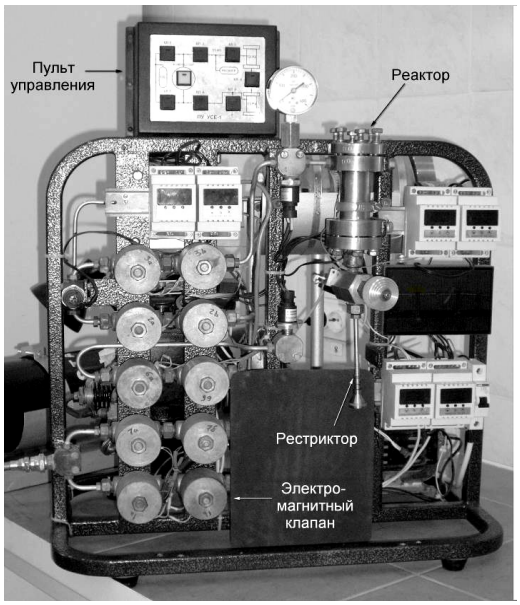



Рис. 1. Общий вид установки сверхкритической флюидной экстракции СФЭ – U

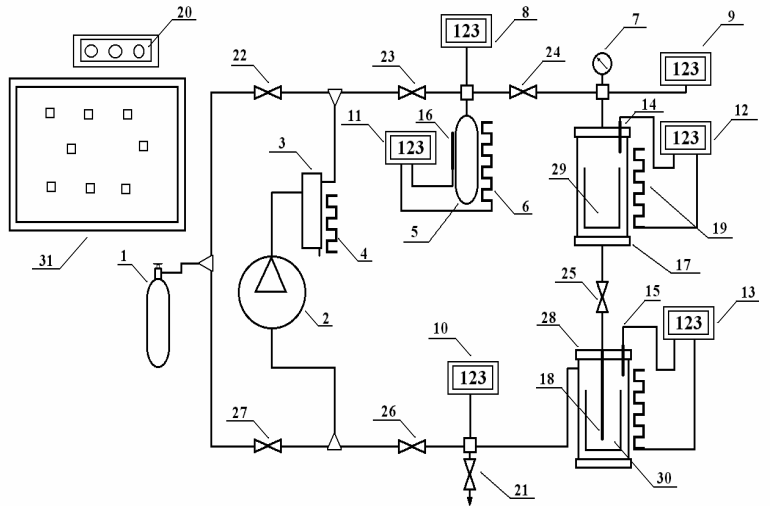



Рис. 2. Блок-схема установки СФЭ – U

1. Газовый баллон $CO_2$; 2. Компрессор КПВ1А; 3. Влагомаслоотделитель; 4. Нагреватель масляного фильтра; 5. Ресивер; 6. Нагреватель ресивера; 7. Манометр контрольный, стрелочный; 8-10. Датчики давления, цифровые; 11-13. Датчики температуры, цифровые; 14-16. Термопары; 17. Реактор; 18. Капиллярный рестриктор; 19. Нагреватель реактора; 20. Контрольный индикатор остаточного давления в системе; 21. Выпускной кран Маевского; 22-27. Перепускные клапаны; 28. Испаритель; 29. Проба; 30. Экстракт; 31. Блок управления.

Таблица 1.

Параметры установки

| Параметр | Значение |
|---|---|
| Рабочее давление (компрессор КПВ-1А) | 0,1 - 20 МПа (1 - 200 атм) |
| Максимальное рабочее давление | 22 МПа |
| Коммутация газовых потоков | Электромагнитные клапаны |
| Объем реактора | 10 - 100 мл |
| Температура реактора | 20 – 60 ºС |
| Температура рестриктора | 20 – 100 ºС |
| Максимальная подача $CO_2$ | 500 моль/мин |
| Температура ресивера | 20 – 90 ºС |

Из экстрактора раствор вещества, который исследуется, в СК - $CO_2$ последовательно проходит через клапан (25), который обогревается, далее через капилляр, который обогревается, изготовленный из нержавеющей стали 12Х18Н10М, на выходном конце которого расположена форсунка с внутренним диаметром 50-200 мкм – рестриктор (18), где имеет место падение давления и растворитель утрачивает свою растворяющую способность. Растворенный компонент (30) вместе с диоксидом углерода, который находится в обычном состоянии (не в СК - $CO_2$), поступает в испаритель (28).

В зависимости от технологических заданий, оборудование позволяет, не нарушая герметичность системы, проводить неограниченное количество циклов экстракции. Для этого перекрывается доступ диоксида углерода, который поступает из испарителя, в баллон (1) за счет перекрытия электромагнитного клапана (26). В случае одноактного процесса экстракции клапан (26) перекрывается и через выпускной клапан Маевского (21) $CO_2$ выпускается из испарителя (18) в атмосферу.

Извлечение полученного элемента из испарителя выполняется после достижения атмосферного давления в испарителе, при этом срабатывает (гаснет) контрольный индикатор остаточного давления в системе (20). Этот же индикатор используется при промывании (вытеснения воздуха из системы) диоксидом углерода при избыточном давлении до 0,3 МПа – пороге срабатывания индикатора (20). Система температурного контроля обеспечивает точность удержания температуры ±1 ºС.

Блок управления (31) позволяет проводить работы, как в ручном, так и в полуавтоматическом режимах.

Размещение образцов в реактор осуществлялось в специально изготовленном цилиндре – пробоприемнике из нержавеющей стали (Ш = 20 мм, h =35 мм). При смене образцов пробоприемник продувался очищенным сжатым воздухом с давлением до 0,6 МПа, или промывался специальными составами (в зависимости от химического состава исследуемого образца) с дальнейшей сушкой в потоке сжатого воздуха.

Таким образом, описанная выше установка СФЭ – U способна обеспечить режим сверхкритической флюидной экстракции урансодержащих исходных образцов в углекислом газе в диапазоне давлений 7,3 - 20 МПа и температур 20 – 60 ºС, как в ручном, так и в полуавтоматическом режимах.

## АНАЛИТИЧЕСКОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

### Рентгеновский флуоресцентный анализатор КРАБ – 3УМ

Определение химического состава проб целевых материалов после проведения СФЭ - $CO_2$ экстракции осуществлялось на рентгеновском бездифракционном анализаторе КРАБ – 3УМ [6].

Метод рентгеновского флуоресцентного анализа широко используется для определения химического состава проб. Суть метода заключается в измерении интенсивности характеристического рентгеновского излучения атомов пробы, которые возбуждаются рентгеновским излучением с энергией, достаточной для эффективной ионизации K или L уровней исследуемых атомов. Поскольку проведение абсолютных измерений является крайне сложной задачей, обычно проводят относительные измерения, используя калибровочные зависимости, полученные для образцов с известными количествами исследуемых атомов. Употребление в качестве эталонных образцов, образцов той же геометрии и наполнения балластными соединениями позволяет уменьшить влияние этих факторов на точность определения количества исследуемых атомов.

Выбор рентгеновского флуоресцентного анализа для определения количества урана в исследуемых пробах связан с такими особенностями метода:

При проведении измерений использовался анализатор рентгеновский бездифракционный КРАБ - 3УМ, который предназначен для возбуждения и регистрации рентгеновских спектров, а также для проведения рентгеноспектрального анализа дискретных проб твердых и порошковых материалов на заранее выбранных 6 химических элементах от кальция (z = 20) до урана (z = 92). Технические характеристики анализатора представлены в таблице. 2.

Принцип действия анализатора основан на возбуждении и регистрации характеристического излучения химических элементов, интенсивность которого находится в определенной зависимости от концентрации этих элементов в исследуемом образце.

### Спектрофотометр СФ – 2000

Для измерения спектральных коэффициентов направленного пропускания излучения жидкими и твердыми прозрачными образцами использовался спектрофотометр СФ – 2000 [7]. Прибор работает под управлением ЭВМ типа IBM PC. Полученная информация выводится на монитор и печатающее устройство.

С помощью спектрофотометра СФ - 2000 можно получать:

- Анализы индивидуальных веществ и многокомпонентных систем;
- Определение концентрации аналитов в биологических жидкостях;
- Контроль содержания неорганических соединений в воде;
- Контроль воздуха рабочей зоны;
- Контроль содержания химических веществ в почве;
- Контроль пищевых продуктов.

Для определения содержания урана в исходных образцах и элюенте на спектрофотометре СФ – 2000 используется органический окрашенный реагент Арсеназо III [8, 9], который характеризуется наибольшей чувствительностью к урану и имеет характерную цветную окраску.

### Основные химические реагенты и реактивы

Диоксид углерода. Для проведения СФЭ - $CO_2$ использовался диоксид углерода, удовлетворяющий требованиям ДСТУ 4817: 2007.

Арсеназо III. - (3,6 – бис - [(2 - арсонофенил)азо] - 4,5 – дигидрокси - 2,7 - нафталиндисульфокислота), молекулярная масса - 776,35, специфический реагент на уран. Темно-красное вещество, умеренно растворимое в воде, хорошо растворимо в водных растворах $NaHCO_3$.

При pH < 4 окраска водных растворов розовая или красно-малиновая, при pH > 5 - фиолетовая или синяя. Арсеназо III образует с металлами (M) очень прочные комплексы, что позволяет определять их в кислых средах: M(IV) и M(V) - в 6 - 10 н. HC1 или $H_2SO_4$, M(II) и M(III) - при pH 1 - 4. Реакции комплексообразования контрастны: реагента 540 нм, комплексов - 665 нм. Реагент применяют для фотометрического определения и концентрирования (в т.ч. экстракцией) Zr, Hf, Sc, актиноидов и лантаноидов, V, Ca, Ba, Be и некоторых других элементов. Фотометрические методы с использованием Арсеназо III характеризуются высокой избирательностью и чувствительностью (предел обнаружения 0,01 - 0,1 мкг/мл).

Трибутилфосфат (ТБФ). Применяется как экстрагент для экстракционной очистки химических концентратов урана [10]. ТБФ — бесцветная органическая жидкость, представляющая собой сложный эфир: $(C_4H_90)_3P0$. Плотность ТБФ близка к плотности воды (0,973 г/см$^3$). Это очень вязкая жидкость. Для снижения вязкости ТБФ растворяют в нейтральной органической жидкости, например, в хорошо очищенном керосине (синтине). Обычно для экстракционных процессов применяется 20 – 40 % - ный раствор ТБФ.

При выполнении работы были использованы следующие химические реактивы: ацетилацетон (АА) с квалификацией «чда»; уайтспирит с квалификацией не ниже «чда»; азотная кислота ($HNO_3$, ГОСТ 4461 - 77) с квалификацией «хч».

Квалификации реактивов «чда» и «хч» позволяла их использовать без дополнительной очистки.

**Методика выбора материала**

Определение содержания гамма-излучающих радионуклидов в исходных образцах материала выполнены в лаборатории радиационных исследований и охраны окружающей среды Национального научного центра «Харьковский физико-технический институт» [11, 12]

Измерения проводились с помощью гамма-спектрометра СЭГ-50(П) на базе полупроводникового германий-литиевого диффузионно-дрейфового детектора ДГДК-60В, окруженного 5 см свинцовой защитой и слоем меди 0,1 мм для уменьшения естественного гамма-фона. В спектрометре применен одноплатный анализатор SBS-75 и программы набора и анализа спектров фирмы „Грин Стар" г. Москва 2б75.

Детектор ДГДК-60В предназначен для измерения энергетических спектров гамма-излучения в диапазоне энергий 0,05 - 10 МэВ. Конструктивно детектор выполнен в виде герметичного неразборного блока детектирования — криостата. Кристалл германия установлен на верхнем конце хладопровода и закрыт цилиндрическим кожухом из алюминиевого сплава диаметром 90 мм. Нижний конец хладопровода погружен в сосуд Дьюара, заполненного жидким азотом. Перечень технических данных детектора ДГДК-60В приведен в таблице 2.

Таблица 2.

Технические данные детектора ДГДК-60В

| | |
|---|---|
| 1. Диапазон регистрируемых энергий, МэВ | 0,05 - 10 |
| 2. Энергетическое разрешение, кэВ: | |
| а) для энергии 122 кэВ по изотопу Со-57 ПШПВ | 1,2 |
| б) для энергии 1332 кэВ по изотопу Со-60 ПШПВ | 2,2 |
| в) для энергии 1332 кэВ по изотопу Со-60 ПШДВ | 4,7 |
| 3. Чувствительность для энергии 1332 кэВ по изотопу Со-60, мм$^2$ | 63 |
| 4. Абсолютная эффективность, % | $6{,}8\cdot10^{-3}$ |
| 5. Площадь чувствительной поверхности, см$^2$ | 12 |
| 6. Толщина чувствительной поверхности, мм | 14 |

Образцы материала помещались в стандартные сосуды Маринелли емкостью 1 дм$^3$.

Первоначальные измерения гамма-спектров образцов были проведены с экспозицией 100 минут. В полученных спектрах были обнаружены гамма-линии, соответствующие рядам естественных радионуклидов, уран - радиевого ($^{238}$U — $^{226}$Ra) и ториевого ($^{232}$Th), а также естественного радионуклида 40 K. Схемы распада рядов ЕРН с указанием периодов полураспада представлены на рис. 3. и рис. 4.

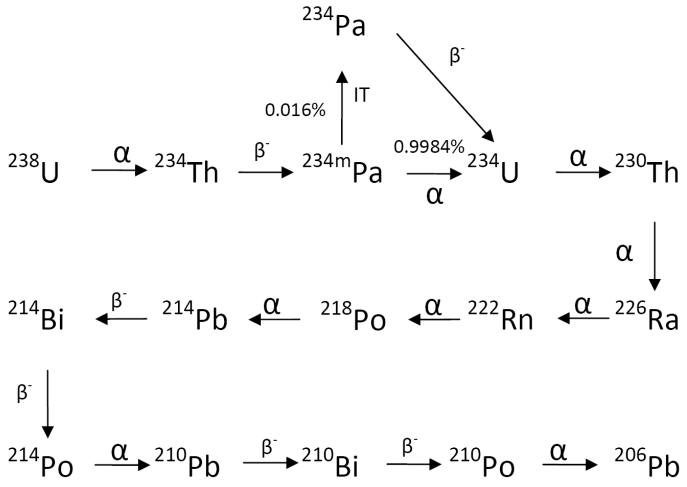



Рис. 3. Уран-радиевый ряд

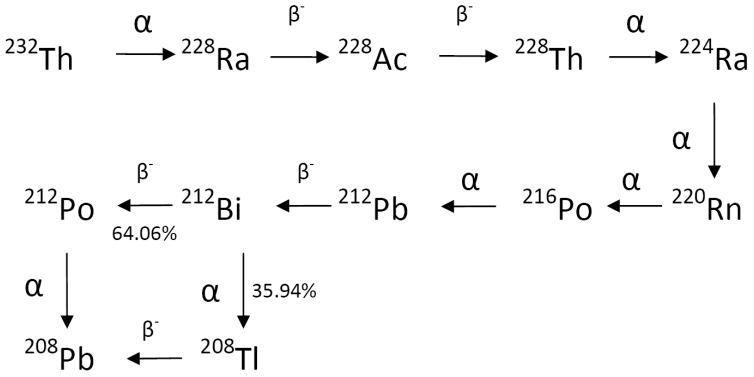



Рис. 4. Ториевый ряд

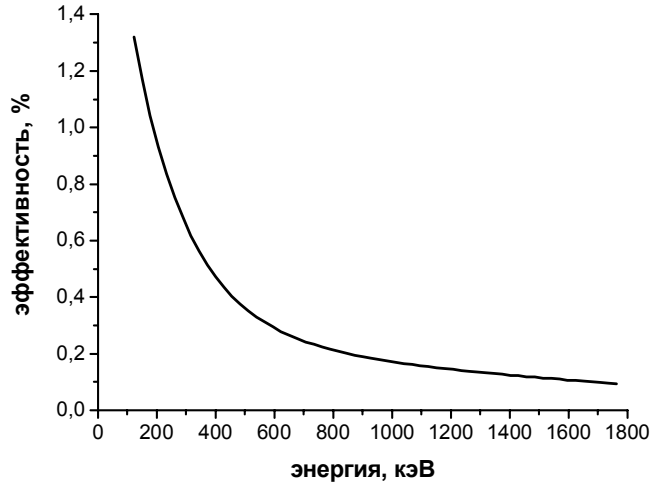



Рис. 5. Зависимость эффективности детектора ДГДК-60В от энергии фотонов для геометрии сосуда Маринелли объемом 1 дм$^3$

С целью поиска других гамма-излучающих нуклидов и более точного определения обнаруженных радионуклидов были проведены измерения с экспозицией 25 часов. Предварительно пробы были выдержаны в закрытых сосудах Маринелли в течение трех недель для достижения в образцах радиоактивного равновесия $^{226}$Ra с его короткоживущими дочерними продуктами распада.

Калибровка по энергии и эффективности проводилась при помощи образцовых спектрометрических гамма-источников (ОСГИ) и аттестованных объемных мер активности специального назначения содержащих изотопы $^{137}$Cs, $^{40}$K, $^{226}$Ra, $^{232}$Th, $^{152}$Eu. На рис. 5. представлены результаты калибровки по эффективности детектора ДГДК-60В для геометрии сосуда Маринелли объемом 1 дм$^3$.

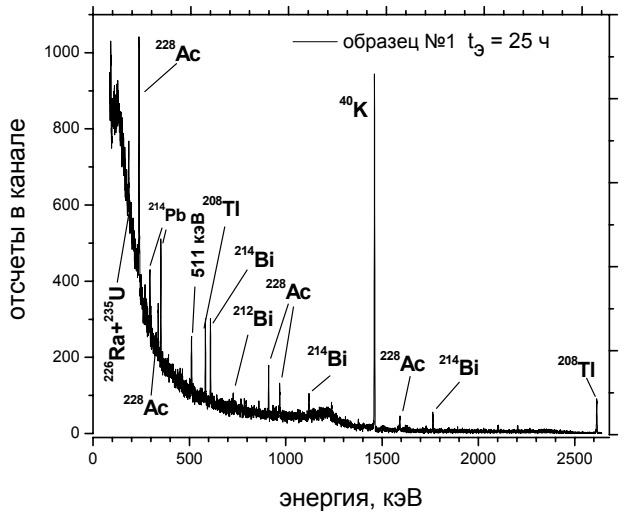



Рис. 6. Гамма-спектр образца №1

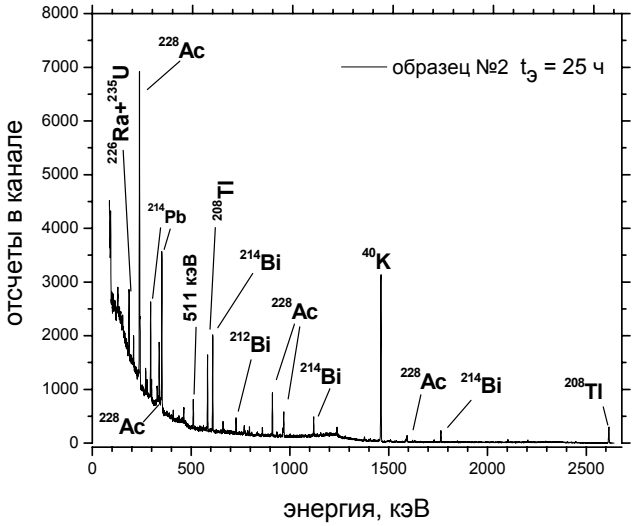



Рис. 7. Гамма-спектр образца №2

На рис. 6 – 8. представлены аппаратурные спектры образцов материалов № 1 - 3.

Активность $^{232}$Th вычислялась по активности $^{228}$Ac, исходя из предположения их радиоактивного равновесия (цепочка распада $^{232}$Th→$^{228}$Ra→$^{228}$Ac), активность. Активность $^{226}$Ra по активности изотопов $^{214}$Pb и $^{214}$Bi (цепочка распада $^{226}$Ra→$^{222}$Rn→$^{218}$Po→$^{214}$Pb→$^{214}$Bi).

При условии сохранения векового радиоактивного равновесия между родоначальником ряда $^{238}$U и дочерним радионуклидом $^{226}$Ra их активности равны.

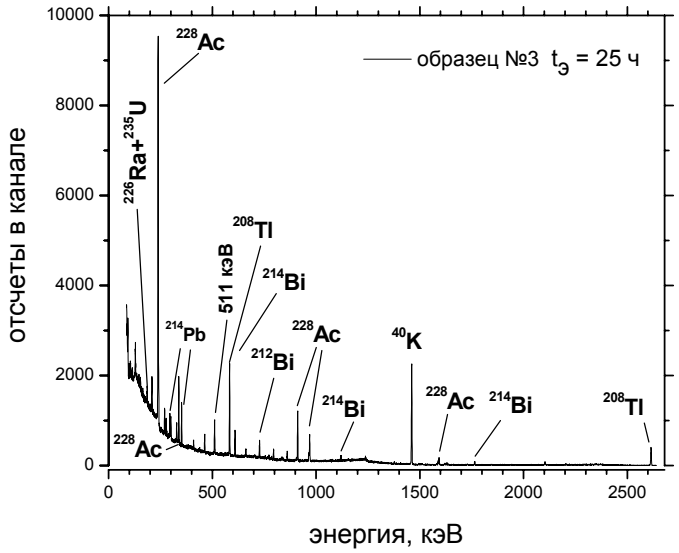



Рис. 8. Гамма-спектр образца №3

Непосредственному определению активности $^{238}$U по линиям изотопов $^{234}$Th – γ - линии: 92,38 кэВ (2,81 %); 92,80 кэВ (2,77 %), X - линия: 92,282 кэВ (0,5 %)(Pa Kα3) (на аппаратурном спектре они не разделяются) мешают γ - линии и X - линии семейств ЕРН, расположенные в этом диапазоне, в частности X - линия $^{228}$Ac 93,35 (3,19 %)(Th Kα1). Измерения активности $^{238}$U, проведенные по γ - линии $^{234m}$Pa 1001,03 кэВ (0,837 %) (цепочка распада $^{238}$U→$_{234}$Th→$^{234m}$Pa) дали завышенные значения по сравнению с цифрами для активностей $^{226}$Ra. Это связано большой погрешностью определения площади соответствующих пиков на аппаратурных спектрах, измеряемых проб.

В естественном уране содержится 99,27 % $^{238}$U, 0,72 % $^{235}$U, $5{,}5\cdot10^{-3}$ % $^{234}$U.

Уран-235 в объектах окружающей среды практически невозможно определить прямым инструментальным гамма - спектрометрическим методом из-за интерференции основной высокоинтенсивной гамма - линии 185,71 кэВ (57,2 %) с энергетической линией 186,21 кэВ (3,59 %) дочернего радионуклида $^{226}$Ra из ряда $^{238}$U.

Результаты измерений удельного содержания естественных радионуклидов в образцах материалов представлены в таблице 3.

Таблица 3.

Содержание изотопов в 1 г материалов по данным гамма - спектрометрии

| Изотоп | $^{238}$U | $^{232}$Th | $^{40}$K |
|---|---|---|---|
| Активность изотопа, Бк/г | $1{,}246\cdot10^{4}$ | $4{,}066\cdot10^{3}$ | $2{,}589\cdot10^{5}$ |
| образец №1 (базальт) | 0,73 мкг | 3,4 мкг | 1,5 мкг |
| образец №2 (гранит, спуск Пассионарии) | 5,5 мкг | 18,0 мкг | 5,4 мкг |
| образец №3 (красный гранит) | 2,6 мкг | 37,0 мкг | 6,6 мкг |
| образец №4 (красный гранит) | 3,1 мкг | 44,0 мкг | 5,8 мкг |
| образец №5 (черный гранит) | 0,13 мкг | 1,1 мкг | 0,73 мкг |
| образец №6 (Бердянский песок) | 48,0 мкг | 1,3 мг | 1,6 мкг |
| образец №7 (гранит, Желтые воды) | 667,0 мкг | - | - |

Описанная выше методика определения по гамма - спектрам содержания радионуклидов в исходных материалах позволяет определить количество целевого материала, и, на этой основе, провести отбор материалов (гранитов) с максимальным содержанием урана.

**Методика пробоподготовки**

Одним из основных этапов при проведении СФЭ – $CO_2$ экстракции является пробоподготовка.

Для подготовки проб были использованы природные минералы, содержание урана в которых определялось с помощью гамма - спектрометра СЕГ-50 (П) с детектором ДГДК-60В. В результате измерений гамма - спектров было получено значение активности 8300 Бк/кг. Точность определения концентраций излучающих изотопов составила 20 %. Содержание урана, вычисленное по данным гамма - спектрометрии, составило 667,0 мкг/г.

Исходный образец минерала дробился и измельчался в порошок с размером зерна менее 50 мкм. Размер зерна определялся методом оптической микроскопии. Порошок массой 10 г заливался 20 мл 40 % азотной кислоты и выдерживался в течение суток. Полученный раствор фильтровался, осадок промывался 20 мл дистиллированной воды и снова фильтровался. Оба раствора смешивались с 6 мл 30 % раствора трибутилфосфата (ТБФ) в керосине и взбалтывались. После расслоения органическая фаза фильтровалась через бумажный фильтр. Таким образом, в предположении о 100 % эффективности всех процедур пробоподготовки, в 1 мл органического экстракта должно содержаться не менее 1,3 мг урана.

Для оценки состава полученного экстракта было проведено сравнение спектров поглощения красителя Арсеназо - III с раствором чистого уранилнитрата (см. рис. 9). Для измерения спектров поглощения в 2 мл $5\text{x}10^{-4}$ % раствора Арсеназо - III в 2 % азотной кислоте добавлялось 0,05 мл ТБФ с экстрактом гранита или уранилнитрата, взбалтывалось и выдерживалось 10 минут для формирования устойчивого цвета. После этого измерялся спектр поглощения относительно чистого раствора Арсеназо - III на спектрофотометре СФ - 2000.

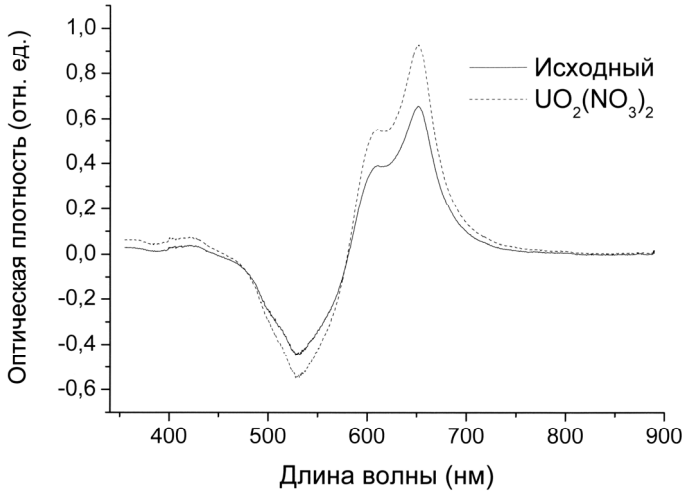



Рис. 9. Спектры оптического поглощения раствора Арсеназо - III с комплексом урана

Как видно из рисунка, поведение кривых поглощения подобно, что свидетельствует о наличии в ТБФ практически чистого уранилнитрата, без заметного количества других элементов. Спектр поглощения соответствует концентрации 6 мкг урана в 1 мл Арсеназо - III.

Таким образом, оценивая концентрацию урана с максимумом поглощения для исходного вещества, получаем значение концентрации урана для материала из Желтых Вод: 1,6 мг урана в 1 мл органической фазы.

Приведенный выше пример отбора образцов исходного материала и пробоподготовки свидетельствует о том, что указанная методика может быть использована для моделирования СФЭ - $CO_2$ экстракции урана из МАЕ на примере марок гранитов с повышенным содержанием природного урана.

## ВЫВОДЫ

Таким образом, в данной работе показано, что изготовленная установка СФЭ – U способна обеспечить режим сверхкритической флюидной экстракции урансодержащих исходных образцов в углекислом газе в диапазоне давлений 7,3 - 20 МПа и температур 20 – 60 ºС, как в ручном, так и в полуавтоматическом режимах.

Описанная методика определения по гамма - спектрам содержания радионуклидов в исходных материалах позволяет определить количество целевого материала, и, на этой основе, провести отбор гранитов с максимальным содержанием урана.

Приведенные методы отбора образцов исходного материала и пробоподготовки свидетельствует о том, что указанная методика может быть использована для моделирования СФЭ - $CO_2$ извлечения урана из МАЕ на примере марок гранитов с повышенным содержанием природного урана.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hugh M.A. Supercritical Fluid Extraction: Principles and Practice. 2nd ed. – Boston, 1994. – 512 p.
2. Borts B.V., Kazarinov Yu. G., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Modelirovanie ekstrakcii kompleksov urana sverkriticheskim uglekislym gazom iz obednennyh uranovyh rud ekstrakciey iz granitov // Sb. nauchn. statey Mezhdunarodnoy shkolyi molodyih uchenyih po yadernoy fizike i energetike. – Alushta (Kryim). – Ukraina, 8-14 iyunya 2009.
3. Borts B.V. Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Ustanovka dlya sverhkriticheskoy flyuidnoy ekstrakcii kompleksov urana iz tehnogennyh mestorozhdeniy // Sb. nauchn. statey 7 Mejdunarodnoy konferencii "Sotrudnichestvo dlya resheniya problemy othodov", 7 - 8 aprelya 2010 g. – Kharkov. – Ukraina. - S. 28-30.
4. Borts B.V., Kazarinov Yu.G., Neklyudov I.M., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Sverhkriticheskaya $CO_2$ ekstraktsiya kompleksov urana iz granitov // Fizika i himiya obrabotki materialov. – 2010. – № 3. – S. 94-96.
5. Borts B.V., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Izvlechenie urana iz materialov tehnogennyih mestorozhdeniy metodom sverhkriticheskoy flyuidnoy ekstraktsii // Yaderna ta radiatsiyna bezpeka. – 2012. – T. 1(53). – S. 61-63.
6. Analizator rentgenovskiy bezdifraktsionnyiy KRAB – 3UM Yab1.211.046. Tehnicheskoe opisanie i instruktsiya po ekspluatatsii. «Krasnyiy Oktyabr». – 1986. – 90 s.
7. Spektrofotometr SF – 2000. Rukovodstvo po ekspluatatsii. ZAO «OKB Spektr». – 2006. – 33 S.
8. Savin S.B. Arsenazo III. Metody fotometricheskogo opredeleniya redkih i aktinidnyih elementov. - M.: Atomizdat, 1966. – 256 s.
9. Himicheskaya entsiklopediya: V 5 tomakh. Tom 5. Triptofan – Yatrokhimiya / Redkol.: Knunyants I.L. (gl. red.) i dr. – M.: Sov. entsikl. – 1988. – 623 s.
10. Sinev N.M., Baturov B.B. Ekonomika atomnoy energetiki / Osnovyi tehnologii i ekonomiki yadernogo topliva. – M.: Atomizdat, 1980. – 344 S.
11. Svidetelstvo ob attestatsii № 100 – 4158/2011, vydano 18.08.2011 g. GP «Harkovskiy regionalnyiy nauchno-proizvodstvennyiy tsentr standartizatsii, metrologii i sertifikatsii». Deystvitelno do 17.08.2014 g.
12. Aktivnost radionuklidov v ob'emnyih obraztsah. Metodika vyipolneniya izmereniy na gamma - spektrometre. Kharkov. NNTs HFTI. 2000.

УДК 547.535.36

# ЭФФЕКТЫ ГАММА – АКТИВАЦИИ И ФУНКЦИОНАЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ УЛЬТРАДИСПЕРСНЫХ $ZrO_2$ - КАТАЛИЗАТОРОВ

**И.Д. Федорец[1], Н.П. Хлапова[1], Н.П. Дикий[2], Е.П. Медведева[2], Д.В. Медведев[2], В.Л. Уваров[2], Д.С. Бакай[2]**

*[1]Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина*
*пл.Свободы,4, 61022, г. Харьков, Украина*
*[2]Институт физики высоких энергий и ядерной физики ННЦ ХФТИ*
*Ул. Академическая,1, 61108, г. Харьков, Украина*
*e-mail: fedorets@univer.kharkov.ua*
Received 9 October, accepted 9 November 2012

На примере конверсии метанола исследовано влияние эффектов γ-активации нанофазных $ZrO_2$-катализаторов на их функциональные характеристики в процессах гетерогенного катализа. Влияние γ-активации $ZrO_2$ на направление и выход реакции проверялось на серии опытов при комнатной температуре с номинально чистым $ZrO_2$ и с $ZrO_2$ с добавлением нано-$Fe_2O_3$ (~3%) в их исходном и γ-активированном состоянии. Активация образцов осуществлялась тормозным γ-излучением на сильноточном электронном ускорителе ННЦ ХФТИ при энергии электронов 22 МэВ и токе 500 мкА. Особенности структурных превращений в γ-активированном $ZrO_2$ контролировались методом рентгеновской дифрактометрии. Показано, что в структуре $ZrO_2$ не произошло существенных изменений и γ-активированные частицы оксида сохраняют монофазность и кристалличность исходного состояния. Каталитическая активность $ZrO_2$ и $ZrO_2/Fe_2O_3$ до и после их γ-активации оценивалась по оптической плотности продуктов конверсионной реакции метанола на спектрофотометре СФ-46. Обнаруженное резкое повышение активности $ZrO_2$-катализаторов после их γ-активации приписано синергизму факторов ионизирующего излучения – больших ионизационных потерь Оже-электронов у поверхности наночастиц $ZrO_2$ от $^{89}Zr$ - и воздействию высокореакционных образований гетерогенного катализа.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** нанопорошок $ZrO_2$, ускоритель электронов, γ-активация, рентгеновская дифрактометрия, конверсия метанола, активность $ZrO_2$-катализаторов

## EFFECTS OF GAMMA-ACTIVATION AND FUNCTIONALITY CHARACTERISTICS OF SUPERDISPERSED $ZrO_2$ –CATALYSTES IN METHANOL CONVERSION

**I.D. Fedorets [1], N.P. Khlapova [1], N.P. Dikiy [2], E.P. Medvedeva [2], D.V. Medvedev [2], V.L. Uvarov [2], D.S. Bakay [2]**

*[1]N.V.Karasin Kharkiv National University*
*Svobody sq. 4, 61022, Kharkiv, Ukraine*
*[2]National Scientific Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology"*
*Akademicheskaya st. 1, 61108, Kharkiv, Ukraine*

On the example of a model system the methanol conversion influence of effects of γ-activation of nano $ZrO_2$-catalystes is investigated on their functional characteristics in the processes of heterogeneous catalysis. Influence of γ-activation nanopowder $ZrO_2$ on direction and reaction yield was controled up on the series of experiments at room temperature with nominally clean $ZrO_2$ and with $ZrO_2$ with addition of nano-$Fe_2O$ (~3%) in their initial and the γ-activated state. Activating of samples was carried out by bremsstrahlung on high-current electronic accelerator in NSC KIPT at energy of electrons 22 MeV and a current 500 μA. The features of structural transformations in γ-activated $ZrO_2$ were researched the method of X-ray diffractometry. It was shown that in the structure of $ZrO_2$ no essential changes and γ-activated particles of oxide keep monophase state and crystallinity of the initial state. Catalytic activity of $ZrO_2$ and $ZrO_2/Fe_2O_3$ before and after their γ-activated was estimated on the absorbency of products of convertion reaction of methanol on the spectrophotometer of SF-46. The found out the sharp increase of activity of $ZrO_2$-catalystes after their γ-activated is ascribed to *synergy* of factors of ionizing radiation - big ionization losses of Auger electrons near a surface $ZrO_2$ nanoparticles from $^{89}Zr$ - and influences of high-reactionary formations of heterogeneous catalysis.
**KEY WORDS:** nanopowder $ZrO_2$, electron accelerator, gamma-activation, X-ray diffractometry, methanol conversion, activity of $ZrO_2$ – catalystes

## ЕФЕКТИ ГАММА - АКТИВАЦІЇ І ФУНКЦІОНАЛЬНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ $ZrO_2$ - КАТАЛІЗАТОРІВ В КАТАЛІТИЧНІЙ КОНВЕРСІЇ МЕТАНОЛУ

**І.Д. Федорець[1], Н.П. Хлапова[1], М.П. Дикий [2], О.П. Медведєва [2], Д.В. Медведев[2], В.Л. Уваров[2], Д.С. Бакай [2]**

*[1]Харьківський національний університет імені В.Н. Каразіна*
*пл. Свободи, 4, 61022, Харків, Україна*
*[2]Національный науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»*
*вул. Академічна,1, 61108, Харків, Україна*

На прикладі конверсії метанолу досліджений вплив ефектів γ-активації нанофазних $ZrO_2$-каталізаторів на їх функціональні характеристики в процесах гетерогенного каталізу. Вплив γ- активації $ZrO_2$ на напрям і вихід реакції перевірявся на серії дослідів при кімнатній температурі з номінально чистим $ZrO_2$ і з $ZrO_2$ з додаванням нано-$Fe_2O_3$ (~3%) в їх початковому і γ - активованому стані. Активація зразків здійснювалася гальмівним γ-випромінюванням на потужнострумовому електронному прискорювачі ННЦ ХФТІ при енергії електронів 22 МеВ і струмі 500 мкА.. Особливості структурних перетворень в γ-активованом $ZrO_2$ контролювалося методом рентгенівської дифрактометрії. Показано, що в структурі $ZrO_2$ не сталося

© Fedorets I.D., Khlapova N.P., Dikiy N.P., Medvedeva E.P., Medvedev D.V., Uvarov V.L., Bakay D.S., 2012

істотних змін і γ-активовані частки оксиду зберігають монофазность і кристалічність вихідного стану. Каталітична активність $ZrO_2$ і $ZrO_2/Fe_2O_3$ до і після їх γ -активації оцінювалася по оптичній щільності продуктів конверсійної реакції метанолу на спектрофотометрі СФ-46. Виявлене різке підвищення активності $ZrO_2$-каталізаторів після їх γ - активації приписане синергізму чинників іонізуючого випромінювання – великих іонізаційних втрат Оже-електронів в поверхні наночасток $ZrO_2$ від $^{89}Zr$ і дії високореакційних утворень гетерогенного каталізу.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** наночастинки оксиду цинку, прискорювач електронів, γ-активація, рентгенівська дифрактометрія, конверсія метанола, активність $ZrO_2$-каталізаторів

Диоксид циркония благодаря отличным характеристикам - большой твердости, тугоплавкости, низкой теплопроводности, отличной износостойкости и высокому коэффициенту преломления - относится к числу широко исследуемых и чрезвычайно востребованных материалов. Композиции на основе $ZrO_2$ широко применяются в качестве конструкционной и функциональной керамики (твердые электролиты и сенсоры), носителей катализаторов, пьезо- и диэлектрической керамики и т.п. [1-5]. Уникальное сочетание механических и электрических характеристик этого широкозонного оксида ($E_g$= 6 эВ) обеспечивают его использование, практически, во всех технологических звеньях оптоэлектронной аппаратуры нового поколения. В принципе, $ZrO_2$ рассматривают как потенциальную замену $SiO_2$ в МОП – устройствах и полевых транзисторах [6], схемах пропускания [7] и запоминающих устройствах [8]. Высокая радиационная стойкость в сочетании с высоким показателем преломления позволяет использовать ультрадисперсные порошки $ZrO_2$ в качестве эффективного пигмента для отражающих покрытий космических аппаратов [9]. Отличная биосовместимость и гипоаллергенность $ZrO_2$ находят с каждым годом всё большее и большее применение в ортопедии и стоматологии [10]. К числу успешных применений $ZrO_2$ относится его использование в качестве катализаторов или носителей катализаторов [11-13]. К примеру, значительные достижения в гетерогенном катализе за последние пять лет связаны как раз с применением низкотемпературных катализаторов нового типа на основе наноструктурированного $ZrO_2$ [14].

Проявляемые $ZrO_2$ ценные качества, сделали его не только одним из самых востребованных, но и широко изучаемым оксидным соединением. Полиморфизму, амфотерной природе $ZrO_2$ и исследованию его структурных, электронных и оптических характеристик в термодинамически устойчивой моноклинной (m) и в метастабильных - тетрагональной (t) и кубической (c) фазах, посвящено огромное число работ [15-16]. При этом особое внимание уделяется процессам фазовой трансформации $ZrO_2$ m → t → c $ZrO_2$ и стабилизации его высокотемпературных фаз (t- и c-фаз), обладающих наиболее высокими эксплутационными свойствами. Используя новейшие технологии, с потенциальными элементами управления формой и свойствами синтезируемого наноматериала, исследуются возможности получения разнообразных наноформ $ZrO_2$ с заданной функциональностью [17]. Наконец, с привлечением современных квантово-механических методов исследуются возможности создания новых наноматериалов на основе $ZrO_2$ и детально изучаются свойства и стабильность моделируемых наноструктур [18].

Что касается использования $ZrO_2$ в качестве катализаторов, то это направление, как и использование других оксидов переходных металлов (ZnO, $TiO_2$ и др.), является достаточно хорошо освоенным. Традиционно $ZrO_2$ применяется в таких реакциях, как гидрирование, дегидрогенизация, деградация и минерализация экологически загрязняющих веществ [19-21]. Особый интерес вызывает возможность использования $ZrO_2$ в решении одной из важнейших экологических проблем - в элиминировании выбросов метана, определяющего фактора в усилении парникового эффекта. На практике для исключения эмиссии метана (из газовых двигателей, электростанций, в нефтехимической промышленности), как известно, необходимо осуществить процесс его полного окисления, например, путем его конверсионного превращения в этилен (окислительная конденсация метана) или путем прямого каталитического окисления в кислородсодержащие продукты (спирты, формальдегид и др.) [21]. В качестве катализаторов подобных реакций наиболее доступными и экономически выгодными, в отличие от катализаторов из благородных металлов [22], считаются недорогие оксиды металлов или их композиции [23]. К примеру, хорошо известно о высокой активности в окислении метана Mn-, Co-, и Fe-стабилизированных катализаторов $ZrO_2$ [24], содержащих оксиды La, Mn и перовскиты $LaMnO_3$ [25], а также смешанных (бинарных) катализаторов различного состава, таких как $ZrO_2$/ $SiO_2$ и др. [26]. Не менее важным, с точки зрения экологии, является использование $ZrO_2$ в реакциях гетерогенной трансэтерификации растительного сырья - при получении биодизельного топлива [14]. Вообще биотопливо, благодаря положительному влиянию на окружающую среду –сжигание биотоплива, в отличие от природных энергоносителей, не приводит к выбросу парниковых газов ($CO_2$) и твердых частиц, а также, вследствие экологической безопасности самого процесса трансэтерификации, привлекает к себе в последние годы огромное внимание и является предметом многочисленных исследований. В значительной мере это относится и к проблеме выбора подходящих для этого процесса оксидных катализаторов. Так, многие из твердотельных оксидов, включая оксиды щелочно-земельных металлов, оксиды переходных металлов и смешанные оксиды, с тем, чтобы оценить их потенциальные возможности в этом виде катализа, многократно тестировались при различных режимах реакции и при различных составах ее реагентов. По результатам проводимых экспериментов опубликовано множество работ и уже составлено общее представление о каталитическом поведении, часто используемых в гетерогенной трансэтерификации, оксидов металлов [14]. Согласно этим

данным, во многих случаях использование $ZrO_2$, благодаря его высокой кислотности, оказывалось более предпочтительным, чем использование оксидов других переходных металлов. К тому же было установлено, что кислотность и, следовательно, каталитическая активность $ZrO_2$, может быть существенно повышена, например, за счет адсорбированных анионов, подобных сульфатам или вольфраматам [14]. Более того, в последнее время во многих сообщениях речь идет о еще более значительном повышении активности $ZrO_2$ в этой реакции, которого можно добиться, используя, вместо обычных коммерческих порошков $ZrO_2$, его нанокристаллические формы [14].

Вообще, исследования последних лет в области гетерогенного катализа с участием оксидов переходных металлов направлены, в основном, на то, как достичь максимальной активности уже существующих катализаторов. Большое внимание уделяется этапу приготовления оксидов - изучаются возможные эффекты морфологии и размеров частиц оксидов, легирующих добавок, смеси оксидов металлов и т.д. [28]. Наряду с этим всесторонне исследуются эффекты предварительной обработки (отжиг, вакуум, радиация и т.д.) и их влияние на структурные и функциональные характеристики оксида [29]. О принципиально новом подходе в решении этой проблемы сообщается в ряде недавних работ [30-33]. По мнению авторов, перспективной альтернативой традиционным методам представляется эффект взаимного усиления различных факторов – *synergia* - новейших развивающихся технологий. К примеру, весьма успешным считается суммарный результат от применяемых совместно таких технологий, как обработка ультразвуком и СВЧ-излучение, с одной стороны, и гетерогенный катализ, с другой стороны. По крайней мере, экспериментальное изучение оптимизации реакции трансэтерификации путем сочетания СВЧ-излучения соевого масла и SrO – катализатора показало, что такое сочетание приводит и к ускорению процесса и сопровождается высокой конверсией [31]. О значительном снижении времени каталитического процесса и о высоком выходе продуктов реакции сообщается и в других публикациях, где речь идет об использовании *in situ* ультразвуковой обработки [32-33].

Не менее перспективным направлением в решении проблемы модификации каталитических свойств оксидов металлов, является, на наш взгляд, использование возможностей ускорительной техники и современных ядерных технологий. Подходящим вариантом в этом отношении может быть гамма-активация оксида металла тормозным γ-излучением электронного ускорителя. Во-первых, при этом возможен выбор оптимальной энергии активационного γ-излучения, а во-вторых, возможно выполнение с большой точностью - методом γ–активационного анализа - идентификации и количественной оценки радионуклидов. До сих пор, в данном направлении каких-либо исследований, как нам известно, не проводилось. Однако можно ожидать, что разнообразные радиационные дефекты (электроны проводимости, междоузельные атомы и вакансии, катионы, анионы и др.), вызванные тормозным γ–излучением и Оже-электронами, испускаемыми в γ–активированном оксиде при распаде радионуклидов $^{89}Zr$, приведут к увеличению концентрации активных центров на поверхности оксида и, как следствие, к повышению его каталитической активности.

Цель настоящей работы заключалась в изучении влияния γ-активации ультрадисперсных $ZrO_2$ катализаторов на их функциональные характеристики в процессах конверсионного превращения углеводородных соединений.

Для активации образцов $ZrO_2$ использовалось тормозное γ-излучение линейного ускорителя электронов ННЦ ХФТИ. Данные о фазовом составе и кристаллической структуре $ZrO_2$ получены с помощью рентгеновской дифрактометрии. Каталитическая активность $ZrO_2$ определялась по реакции деградации метанола. Показано, что образцы γ-активированного $ZrO_2$ сохраняют после воздействия тормозного γ-излучения высокий уровень кристалличности и монофазность и обнаруживают высокую активность в каталитической реакции превращения метанола.

## МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

*Подготовка образцов*. В качестве исходного материала для $ZrO_2$-катализаторов использовался кристаллический порошок моноклинного диоксида циркония ТУ 95-2782-2001 (Россия) с максимальным размером частиц до 5мкм. Затем исходный порошок (предварительно охлажденный) измельчался в агатовой ступке до более однородного и тонкодисперсного состояния. Для активации образцов $ZrO_2$ использовалось тормозное γ-излучение линейного ускорителя электронов ННЦ ХФТИ с энергией электронов 22 МэВ и током 500 мкА. Спектр γ-излучения регистрировался Ge(Li)-детектором с энергетическим разрешением 3,25 кэВ по линии 1333 кэВ. Активация образцов проводилась на воздухе, температура образцов в процессе активации не превышала 35ºС. Максимальная поглощенная доза при γ-облучении ($E_\gamma \sim 1{,}5$-2 МэВ) $ZrO_2$ составила ~ 20 МГр.

*Рентгеновская дифрактометрия.* Структурно-фазовый состав порошков $ZrO_2$ контролировался рентгено-дифракционным методом с использованием дифрактометра ДРОН-2 с медным излучением ($\lambda_{CuK\alpha} = 1{,}54178$ Å) при напряжении 30 кВ и токе 10 мА. Спектры регистрировались в диапазоне от 20 до 80° со скоростью сканирования 1°/мин. В качестве стандарта при съёмке рентгенограмм использовали дифракционное отражение от плоскости (200) монокристалла NaCl. Полученные рентгенограммы анализировали с использованием базы данных ICDD PDF-2. Размеры кристаллитов (*D*) вычислялись по уширению максимумов рентгенограмм, кристалличность - по сумме площадей выбранных пиков. Вызванные γ-активацией изменения в фазовом составе, структуре и размерах кристаллитов $ZrO_2$, определялись сравнительным анализом рентгенограмм

исходных и γ-активированных образцов. Рентгенограммы обрабатывались прямым методом по программе Fityk.

*Каталитическая активность*. Для определения каталитической активности $ZrO_2$ в качестве модельной реакции рассматривалась конверсия метанола. Реакция осуществлялась при комнатной температуре в бюксе из кварцевого стекла емкостью 6 мл. Каталитическая активность $ZrO_2$ проверялось на серии тестов с номинально чистым $ZrO_2$ и с $ZrO_2$ с добавлением нано-$Fe_2O_3$ (~3%) в их исходном и γ-активированном состоянии и оценивалась по оптической плотности выделившихся продуктов на спектрофотометре СФ-46. Для каждого теста навеска исследуемого образца (100 мг) помещалась в $CH_3OH$ (3 мл) в бюксе и по истечению определенных промежутков времени (1, 3, 26 и 98 часов) из смеси осуществлялся забор пробы - 0,5 мл. Объем взятой пробы доводили $CH_3OH$ до 4 мл и помещали в кварцевые кюветы для измерения оптической плотности образовавшихся продуктов реакции в видимой и УФ-областях спектра (λ=200-600 нм).

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

*Гамма-активация*. На рис. 1 представлен γ-спектр диоксида циркония.

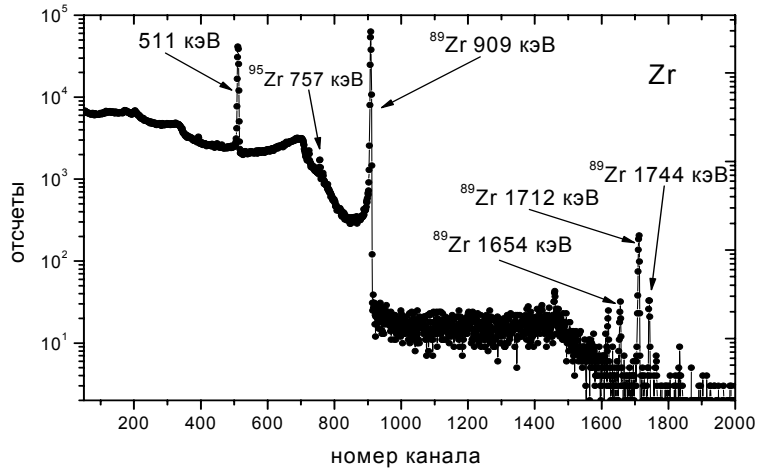



Рис.1. γ-спектр диоксида циркония.

Как видно из рис. 1, в γ-спектре диоксида циркония наблюдались характерные для Zr γ-линии изотопов $^{89}Zr$ и $^{95}Zr$ из реакций $^{90}Zr(\gamma,n)^{89}Zr$ и $^{96}Zr(\gamma,n)^{95}Zr$. Спектр γ-излучения регистрировался Ge(Li)-детектором с разрешением 3,25 кэВ по линии 1333 кэВ. Распаду $^{89}Zr$ сопутствовали Оже-электроны с энергией 1,91 (78,6%) и 12,7 (19,2%) кэВ, и пробегами ~ 30 и 850 нм, соответственно.

*Рентгеновская дифрактометрия.* На рис. 2 представлены рентгеновские дифрактограммы исходных и γ-активированных порошков $ZrO_2$. На обеих дифрактограммах наблюдаются крутые линии дифракции высокой интенсивности, характерные для диоксида циркония моноклинной сингонии. Линейчатая диаграмма вдоль оси *X*, взятая из справочных данных (PDF № 37-1484) для моноклинной фазы кристаллического диоксида циркония, хорошо согласуется с экспериментальными данными. Никаких пиков, относящихся к какой-либо другой фазе $ZrO_2$ или примеси, в исследуемых спектрах не наблюдалось. При сравнении спектров $ZrO_2$ до и после γ-активации (рис. 2, кривая *a* и кривая *b*) в рентгенограмме γ-активированных образцов не обнаружено ни сдвигов максимумов, ни искажений их формы. Относительная интенсивность и ширина дифракционных пиков для γ-активированных образцов, в общем, были аналогичны их исходному состоянию. Замеченные различия были связаны, в основном, с изменениями интенсивности и интегральной площади главных пиков. Для γ-активированного $ZrO_2$ несколько возрастала интенсивность линий при 2θ равных 28,2; 31,5; 34,4; 35,4 и 50,2° и, в дополнение к этому, наблюдалось их сужение. Это указывало на то, что условия γ-активации порошков $ZrO_2$, с одной стороны, способствовали формированию более совершенной кристаллической структуры оксида, на что указывало усиление пиков, а с другой стороны, судя по сужению основных линий, приводили к понижению его дисперсности. Вообще, сужение пиков на рентгенограммах может быть приписано увеличению размеров кристаллитов или уменьшению деформации кристаллической решетки, или действию обоих факторов. Размер кристаллитов (*D*) в образцах до и после γ-активации, так же как и решетчатая деформация ($\eta$) вычислялись по уширению линий (рентгеновским методом), выполненным по различным отражениям *m*-$ZrO_2$, с использованием программного обеспечения, основанном на так называемом холловском уравнении [34]:

$$\beta\cos\theta = K\lambda / D + 2\eta\sin\theta, \qquad (1)$$

где $\lambda$ — длина волны рентгеновского излучения (1,54178 Å), $\beta$ — физическое уширение дифракционного максимума (в единицах радиан), $\theta$ — положение дифракционного пика. Уширение дифракционной линии $\beta$

вычислялось по формуле:

$$\beta = \beta_{образца} - \beta_{стандарта}, \quad (2)$$

где $\beta_{образца}$ и $\beta_{стандарта}$ – полуширина линии образца и стандарта (монокристалла NaCl). Для определения кристалличности образцов $ZrO_2$ использовалось следующее уравнение:

$$C_{изм.} = C_{ст.}\eta_{ст.}/\eta_{изм.}, \quad (3)$$

где $C_{изм.}$ и $C_{ст}$ – кристалличность, а $\eta_{изм.}$ и $\eta_{ст}$ - решетчатая деформация измеряемых и стандартных образцов. По результатам расчета увеличение размеров ОКР в порошке диоксида циркония после γ-активации составило около 15%, а снижение решетчатой деформации ($\eta$) - не более 12%. Кристалличность для γ-активированных порошков $ZrO_2$, как и предполагалось, достигала почти 100%. Размеры кристаллитов для исходных порошков *m*-$ZrO_2$ варьировались от 50 до 140 нм, а после γ-активации - от 75 до 200 нм.

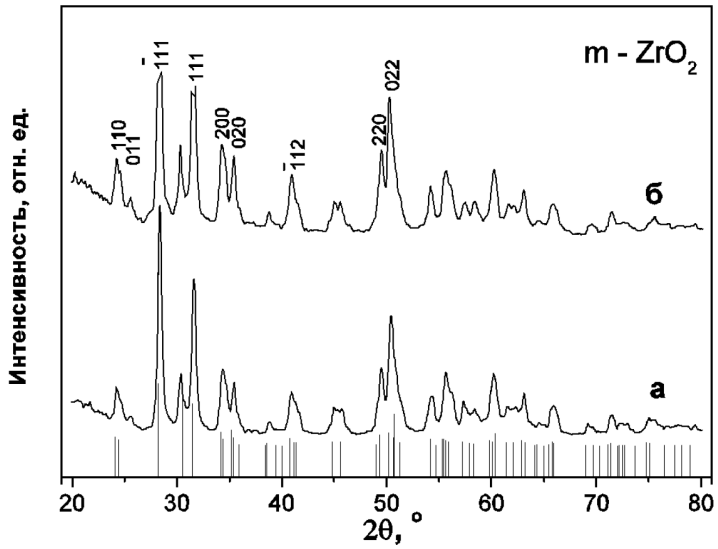



Рис. 2. Рентгенограммы $ZrO_2$ до и после γ-активации (а – исходный образец, б - γ-активированный образец).

*Каталитическая активность*. Для выяснения влияния факторов γ-активации подготовленных $ZrO_2$-катализаторов на характер конверсионного превращения метанола проведено сравнительное исследование на нескольких образцах $ZrO_2$ - с номинально чистым $ZrO_2$ и с $ZrO_2$ с добавлением нано-$Fe_2O_3$ (~3%) в их исходном и γ-активированном состоянии. Активность $ZrO_2$-катализаторов оценивалась по оптической плотности выделившихся продуктов конверсионной реакции метанола. Наблюдения проводились при комнатной температуре.

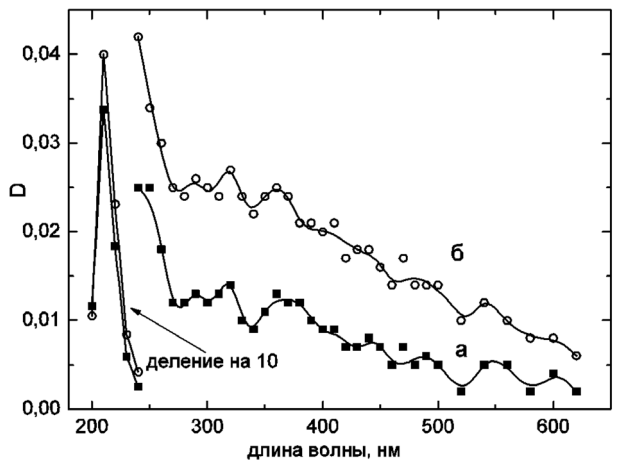



Рис. 3. Спектры поглощения продуктов конверсии метанола после 3 часов реакции на $ZrO_2/Fe_2O_3$- катализаторах до и после их γ-активации
(а – исходный образец, б - γ-активированный образец)

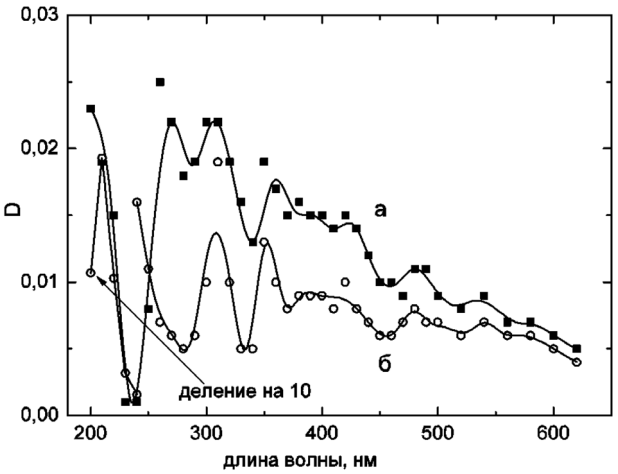



Рис. 4. Спектры поглощения продуктов конверсии метанола после 3 часов реакции на $ZrO_2$- катализаторах до и после их γ-активации
(а – исходный образец, б - γ-активированный образец)

На рис. 3а,б и 4а,б показаны спектры поглощения продуктов конверсии метанола после 3 часов реакции на $ZrO_2/Fe_2O_3$ и $ZrO_2$-катализаторах до и после их γ-активации, соответственно.

Как видно из рис. 3а,б и 4а,б, приведенные спектры демонстрируют при практически одинаковом профиле резкое различие в интенсивности полос поглощения. Однако во всех случаях форма пиков и их положение в спектральном диапазоне практически совпадают. Так, все спектры характеризуются наличием интенсивной полосы в коротковолновой области спектра с максимумом при 200 нм, приписываемой поглощению диенов [35]. Кроме этого в области 300-450 нм наблюдаются несколько широких полос: полоса с максимумом при 323 нм, обычно приписываемая поглощению димеризованных алкенированных карбениевых ионов [35], полоса около 360-370 нм - поглощению монодиеновых карбокатионов, а также полоса, ассоциируемая с поглощением малых ароматических катионов при 430 нм [35]. Положения пиков и их интенсивность в спектрах поглощения для всех проведенных тестов с участием $ZrO_2$- и $ZrO_2/Fe_2O_3$-катализаторов суммированы и показаны таблице.

Таблица.

Интенсивность полос в спектрах поглощения продуктов реакции каталитического окисления метанола при участии $ZrO_2/Fe_2O_3$ и $ZrO_2$ до и после γ-активации

| Полоса, λ, нм | $ZrO_2/Fe_2O_3$, до/после γ-активации | | | $ZrO_2$, до/после γ-активации | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | 1ч | 3 ч | 26 ч | 1ч | 3ч | 98 ч |
| 210 | 0,196 / 0,351 | 0,338 / 0,4 | 0,552 / 0,611 | 0,057 / 0,157 | 0,020 / 0,193 | 0,021 / 0,236 |
| 323 | 0,005 / 0,022 | 0,014 / 0,027 | 0,013 / 0,108 | 0,25 / 0,15 | 0,01 / 0,018 | 0,003 / 0,012 |
| 360-370 | 0,004 / 0,018 | 0,013 / 0,025 | | | 0,04 / 0,01 | |
| 430 | 0,004 / 0,017 | 0,008 / 0,018 | | | 0,001 / 0,002 | |

Из приведенных в этой таблице данных отчетливо видно преимущество в каталитических свойствах γ-активированных тонкодисперсных порошков оксидов, по сравнению с их исходными образцами. Во всех реакциях и на всех ее стадиях обнаруживалось резкое повышение каталитической активности $ZrO_2$- и $ZrO_2/Fe_2O_3$-частиц после их γ-активации. Причем в отдельных случаях, например, после 26 часов анализируемого времени реакции, выход её продуктов в присутствии γ-активированных $ZrO_2/Fe_2O_3$-катализаторов более чем на порядок превышал их выход до проведения γ-активации материалов. Вообще образцы $ZrO_2$, смешанные с нанопорошком $Fe_2O_3$, как видно из рис. 3а,б и таблицы, обладали более высокой каталитической активностью, чем номинально чистые порошки $ZrO_2$ (4а,б). Подобное различие в поведении $ZrO_2$- и $ZrO_2/Fe_2O_3$-катализаторов можно отнести на счет более высокой удельной площади поверхности частиц $ZrO_2/Fe_2O_3$, по сравнению с частицами $ZrO_2$, и более высокой энергии активации каталитической реакции на $ZrO_2/Fe_2O_3$-катализаторах, чем на $ZrO_2$-катализаторах. В принципе, этот факт указывает на то, что $Fe_2O_3$ является активным соединением и может использоваться для $ZrO_2$-катализаторов в качестве эффективного дисперсионного агента.

Объяснением общего повышения каталитической активности γ-активированных $ZrO_2$- и $ZrO_2/Fe_2O_3$-нанопорошков является, по всей видимости, резко возросшая, в результате воздействия тормозного γ–излучения и Оже-электронов от $^{89}Zr$ и $^{95}Zr$, активность поверхности оксидов. Действительно, с одной стороны, можно ожидать, что облучение тормозным γ–излучением в процессе γ активации образцов приведет к появлению в объеме и на поверхности частиц оксида разнообразных радиационных дефектов - вакансий ионов кислорода, междоузельных ионов металла, электронов проводимости и др., способных эффективно влиять на его адсорбционные свойства. К примеру, часть электронов, находящихся в поверхностных анионных вакансиях, может быть захвачена молекулами атмосферного кислорода (из-за облучения на воздухе) и в результате чего будет образован $O_2^-$ ads. Это повторяющийся во время облучения процесс и, следовательно, концентрация адсорбированного кислорода ($O_2^-$ ads), выполняющего, как известно [29], важную роль в инициировании окисления углеводородных соединений, в случае γ–облученного $ZrO_2$ будет более высокая, по сравнению с необлученным. С другой стороны, воздействие Оже-электронов от $^{89}Zr$ с энергией 1,91 и 12,7 кэВ, обладающих высокой удельной тормозной способностью (~ 25 кэВ/мкм) и пробегами, сравнимыми с размерами частиц оксидов, приведет, из-за образования у поверхности частиц высоких концентраций дефектов, к еще большему изменению их поверхностной активности. Однако более значимым фактором в данном случае представляется сочетание *in statu nascend* воздействия высвобождающихся при распаде радионуклидов $^{89}Zr$ в γ–активированных частицах Оже-электронов и гетерогенного катализа. Именно при таком непосредственном воздействии ионизирующего излучения - Оже-электронов, сопутствующих распаду $^{89}Zr$ в процессе катализа, - на окружающую частицы оксида реакционную среду возможно образование высоких концентраций энергетически активных гидратированных электронов ($e_{aq}^-$), гидроокисных радикалов ($OH^\bullet$), пероксидов ($H_2O_2$) и других высокореактивных групп, необходимых для направленного и ускоренного развития конверсионной реакции. Можно прийти к заключению, что наблюдаемое на опыте радикальное повышение каталитической активности $ZrO_2$- и $ZrO_2/Fe_2O_3$-частиц после их γ-активации достигается в результате синергетического эффекта радиационно-индуцированных на поверхности оксида активных центров и образующихся в конверсионной среде высокореакционных соединений.

## ВЫВОДЫ

1. Показана возможность использования мощных пучков электронов для активации нанопорошков $ZrO_2$ тормозным γ-излучением на сильноточном электронном ускорителе ННЦ ХФТИ с энергией электронов 22 МэВ и током 500 мкА.

2. Методом рентгеновской дифрактометрии проведен сравнительный анализ фазового состава и состояния кристаллической структуры исходного и γ-активированного $ZrO_2$ и показано, что все исследуемые образцы представляют собой поликристаллический монофазный диоксид циркония моноклинной сингонии, с размерами кристаллитов от 50 до 140 нм в исходном и от 75 до 200 нм в γ-активированном состоянии.

3. Каталитическая активность нанопорошков $ZrO_2$ - номинально чистого $ZrO_2$ и $ZrO_2$ с добавлением $Fe_2O_3$ (~3%) - в их исходном и γ-активированном состоянии оценивалась по оптической плотности выделившихся в процессе конверсии метанола продуктов реакции.

4. Показано, что концентрация всех идентифицированных продуктов каталитической реакции при использовании γ-активированных нанопорошков $ZrO_2$ и $ZrO_2/Fe_2O_3$ в несколько раз превышала выход этих же продуктов в случае неактивированных оксидов. По результатам анализа состава и концентрации продуктов конверсии метанола сделан вывод о взаимосвязи индивидуальных качеств $ZrO_2$ и $ZrO_2/Fe_2O_3$ и эффективностью каталитического процесса с их участием.

5. Высказано предположение, что наблюдаемое на опыте резкое повышение каталитической активности $ZrO_2$- и $ZrO_2/Fe_2O_3$-частиц после их γ-активации достигается в результате синергетического взаимодействия радиационно-индуцированных на поверхности оксида Оже-электронами активных центров и образующихся в процессе конверсии метанола высокореакционных соединений.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Gao Q. Fang X., Wu X. et al. Mesoporous zirconia nanobelts: Preparation, characterization and application in catalytical methane combustion // Microp. Mesop. Mat. -2011. – Vol. 143. – P.333-340.
2. Li Y., He D.H., Cheng Z.X. et al. Effect of calcium salts on isosynthesis over $ZrO_2$ catalysts //J. Mol. Catal. A: Chem. − 2001. − Vol. 175. − P. 267-275.
3. Murase Y., Kato E. Role Water Varop in Crystalline Growth and Tetragonal-Monocline Phase Transformation of $ZrO_2$ // J. Am. Ceram. Soc. − 1983. − Vol. 66. − P.196-200.
4. Konstantinova T.E., Danilenko I.A., Pilipenko N.P., Volkova G.K. Nanomaterials for SOFC electrolytes and anodes on the base of zirconia // Electrochem. Soc. Proc. – 2003. − Vol. 7. – P. 153-159.
5. Xia C.R., Cao H.Q., Wang H. et al. Sol–gel synthesis of yttria stabilized zirconia membranes through controlled hydrolysis of zirconium alkoxide // J. Membr. Sci. −1992. − Vol.162. − P. 181-188.
6. Lu Y., Bangsaruntip S., Wang X. et al. DNA Functionalization of Carbon Nanotubes for Ultrathin Atomic Layer Deposition of High Dielectrics for Nanotube Transistors with 60 mV/Decade Switching // J. Am. Chem. Soc. −2006. − Vol. 128. −P. 3518-3519.
7. Wang S.J. Crystalline zirconia oxide on silicon as alternative gate dielectrics // Appl. Phys. Lett. .−2001.− Vol. 78. − P.1604-1606.
8. Patra A., Friend C., Kapoor R. Upconversion in $Er^{3+}$:$ZrO_2$ Nanocrystals //J. Phys. Chem. B.−2002.− Vol. 106. − P.1909-1912.
9. Mikhaylov M.M., Neshchimenko V.V., Skripka N.G. i dr. Opticheskie svoystva i radiatsionnaya stoykost' poroshkov dioksida tsirkoniya, modifitsirovannykh redkozemel'nymi elementami // Perspektivnye materialy. -2010.- № 3. – S. 14-20.
10. Wang F. Banerjee D., Liu Y. et al. Upconversion nanoparticles in biological labeling, imaging, and therapy // Analyst − 2010. − Vol. 135. − P. 1839-1854.
11. Hino M., Arata K. Synthesis of Solid Superacid of Tungsten Oxide Supported Zirconia and Its Catalytic Action of Reactions of Butane and Pentane // Chem. Commun. − 1998. − Vol.18. − P.1259-1260.
12. Jason L.B., Alexis T.B. Mechanistic Studies of Methanol Oxidation to Formaldehyde on Isolated Vanadate Sites Supported on High Surface Area Zirconia // J. Phys. Chem. C. − 2008. − Vol. 112. − P. 6404-6412.
13. Iglesia E., Soled S.L., Kramer G.M. Isomerization of Alkanes on Sulfated Zirconia: Promotion by Pt and by Adamantyl Hydride Transfer Species // J. Catal. −1993. − Vol. 144. −P.238-253.
14. Refaat A.A. Biodiesel production using solid metal oxide catalysts // Int. J. Environ. Sci. Tech.−2011.− Vol. 8. −P. 203-221.
15. Kalinovich D.F., Kuznetsova L.I., Denisenko E.T. Dioksid tsirkoniya: svoystva i primenenie // Poroshkovaya metallurgiya. - 1987. - № 11. - S. 98-103.
16. Zavodinskiy V.G., Chibisov A.N. O stabil'nosti kubicheskogo dioksida tsirkoniya i stekhiometricheskikh nanochastits dioksida tsirkoniya // FTT. −2006. – T.48, vyp. 2. – S. 343-347.
17. Cao H.Q., Qiu X.Q., Luo B., Y. et al. Synthesis and Room-Temperature Ultraviolet Photoluminescence Properties of Zirconia Nanowires. //Adv. Funct. Mater. −2004. −Vol. 14. − P. 243-246.
18. Gracia F., Wolf E.E.. Monte Carlo simulations of the effect of crystallite size on the activity of a supported catalyst // Chem. Eng. Jour.- 2001.-Vol. 82.- P. 291-301.
19. Hsu C., Heimbuch C., Armes C.T et al. A Highly Active Solid Superacid Catalyst for n-Butane Isomerization: A Sulfated Oxide Containing Iron, Manganese and Zirconium // J. Chem. Soc., Chem. Commun. −1992. − Issue 22. − P. 1645 - 1646.
20. Tanabe K. Surface and catalytic properties of $ZrO_2$ // Mat. Chem. Phys. – 1985. – Vol. 3. – P. 747-764.
21. Sinev M.Yu. Free radicals in catalytic oxidation of light alkanes: Kinetic and thermo-chemical aspects // J. Catal. – 2003. - Vol. 216 (1-2). - P. 468-476.
22. Mouaddib N., Feumi-Jantou C., Garbbowski E. et al. Catalytic oxidation of methane over palladium supported on alumina: Influence of the oxygen-to-methane ratio // Appl. Catal. A. − 1992.− Vol. 87. − P.129-144.
23. Marti P.E., Maciejewski M., Baiker A. Methane combustion over LaO.8SrO.2$MnO^{3+}$x supported on $MAl_2O_4$ (M = Mg, Ni and

Co) spinels // Appl. Catal. B − 1994. − Vol. 4. − P. 225-235.
24. Choudhary V.R., Uphade B.S., Pataskar S.G et al. Low-Temperature Complete Combustion of Methane over Mn-, Co-, and Fe-Stabilized $ZrO_2$ // Angew. Chem. Int. Ed. − 1996. − Vol. 35. − P.2393-2395.
25. Cimino S., Colonna S., Rossi S. et al. Methane Combustion and CO Oxidation on Zirconia-Supported La, Mn Oxides and LaMnO3 Perovskite // J. Catal. − 2002. − Vol. 205. − P.309-317.
26. Saad L., Riad M. Characterization of various zinc oxide catalysts and their activity in the dehydration-dehydrogenation of isobutanol // J. Serb. Chem. Soc. – 2008. − Vol. 73(6). − P.997-1009.
27. Iglesia E., Soled S., Kramer G. Isomerization of Alkanes on Sulfated Zirconia: Promotion by Pt and by Adamantyl Hydride Transfer Species // J. Catal. −1993. − Vol. 144. − P. 238-253.
28. Huang F., Chen D., Zhou J. et al. Modifying the phase and controlling the size of monodisperse $ZrO_2$ nanocrystals by employing Gd3+ as a nucleation agent // Cryst. Eng.Comm. −2011. − Vol. 13. − P. 4500-4502.
29. Sudhakar C., Rao V. and Kuriacose J. Influence of Irradiation on the Catalitic Properties of zinc oxide // Radiat. Phys. Chem. . −1982. − Vol. 19. − P. 101-105.
30. Zhang S., Zu Y., Fu Y. et al. Rapid microwave-assisted transesterification of yellow horn oil to biodiesel using a heteropolyacid solid catalyst // Bioresour. Tech. − 2010. − Vol. 101. − P. 931-936.
31. Koberg M., Abu-Much R., Gedanken A. Optimization of bio-diesel production from soybean and wastes of cooked oil: Combining dielectric microwave irradiation and a SrO catalyst // Bioresour. Tech. − 2010. − Vol. 99. − P. 3439-3443.
32. Hsiao M., Lin C., Chang Y. et al. Ultrasonic mixing and closed microwave irradiation-assisted transesterification of soybean oil // Fuel. − 2009. − Vol. 89. − P. 3618-3622.
33. Kumar D., Kumar G., Poonam C. et al. Ultrasonic-assisted transesterification of Jatropha curcus oil using solid catalyst, Na/SiO2 // Ultrasonics Sonochemistry. −2010. − Vol. 17. − P. 839-844.
34. Klug H.P., Alexander L.E. X-ray Diffraction Procedures For Polycrystalline and Amorphous Materials.– New York, 1974.– 665p.
35. Forster H. UV/VIS Spectroscopy // Mol. Sieves. – 2004. – Vol.4. – P. 337-426.

УДК 548.1:533.9

# СТРУКТУРНЫЕ ОСОБЕННОСТИ И СПИНОВЫЕ ВОЛНЫ В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ ЖЕЛЕЗО-ИТТРИЕВЫХ ГРАНАТОВ

**В.Г. Кириченко, О.В. Коваленко**
*Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина, Институт высоких технологий*
*61108, г. Харьков, пр. Курчатова, 31*
*e-mail: kirichenko@pht.univer.kharkov.ua*
Received 3 October 2012, accepted 22 November 2012

Представлен обзор некоторых результатов исследования формирования структур ферромагнетиков для магнитооптических устройств. Кратко рассмотрены процессы взаимодействия спиновых волн с железо-иттриевыми гранатами, в том числе в тонкопленочных структурах. Проанализированы возможности применения мессбауэровской спектроскопии при определении структуры и фазового состава феррит-гранатов и связи параметров структуры с накачкой спиновых волн.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА**: феррит-гранаты, структура, спиновые волны, тонкие пленки, мессбауэровская спектроскопия

**STRUCTURAL FEATURES AND SPIN WAVES IN THIN FILMS OF YTTRIUM-IRON GARNET**

**V.G. Kirichenko, O.V. Kovalenko**
*Kharkov National University, High Technology Institute*
*31 Kurchatov St., Kharkov, 61108, Ukraine*

The results of the study of structure formation ferromagnets for magnetooptical devices. Briefly examines the processes of interaction of spin waves with yttrium iron garnet, including thin-film structures. The possibilities of application of Mössbauer spectroscopy to determine the structure and phase composition of the garnet structure parameters and communication with the pumping of spin waves.
**KEY WORDS:** ferrite garnets, structure, spin waves, thin films, Mossbauer spectroscopy

**СТРУКТУРНІ ОСОБЛИВОСТІ ТА СПІНОВІ ХВИЛІ В ТОНКИХ ПЛІВКАХ ФЕРИТ-ГРАНАТІВ**

**В.Г. Кіріченко, О.В. Коваленко**
*Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна, Інститут високих технологій*
*61108, м. Харків, пр. Курчатова, 31*

Представлені результати дослідження формування структур феромагнетиків для магнітооптичних пристроїв. Коротко розглянуті процеси взаємодії спінових хвиль із залізо-ітрієвими гранатами, в тому числі в тонкоплівкових структурах. Проаналізовано можливості застосування мессбауеровскої спектроскопії при визначенні структури і фазового складу феритгранатів та зв'язку параметрів структури із накачуванням спінових хвиль.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** ферит-гранати, структура, спінові хвилі, тонкі плівки, месбауерівська спектроскопія

Значительный прогресс в физике и технике создания и взаимодействия спиновых волн в ферромагнетиках стимулирует, в частности, их использование в устройствах на цилиндрических магнитных доменах, которые широко распространены в вычислительной технике вследствие высокой надежности. В качестве материалов в этих приборах используются монокристаллические ферриты-гранаты (ФГ). Для создания устройств с очень высокой плотностью записи в настоящее время используют ионно-имплантированные пленки ФГ, в частности железо-иттриевых гранатов (ЖИГ) на подложках из галлий-гадолиниевого граната (ГГГ).

Представлен обзор некоторых результатов исследования формирования структур ферромагнетиков для магнитооптических устройств. Кратко рассмотрены процессы взаимодействия спиновых волн с железо-иттриевыми гранатами, в том числе в тонкопленочных структурах. Проанализированы возможности применения мессбауэровской спектроскопии при определении структуры и фазового состава феррит-гранатов и связи параметров структуры с накачкой спиновых волн.

**Гранаты: структура, свойства.** В общем случае, гранаты (от лат. granatus – зернистый), минералы, относящиеся к силикатам, представляют сложную группу переменного состава с общим типом химической формулы $R^2_3+R^3_2+[SiO_4]_3$, где: $R^{2+}$ – Mg, Fe, Mn, Ca; $R^{3+}$ – Al, Fe, Cr. Возможно замещение типа $CaFe^{3+}$ на $NaTi^{4+}$. В радикале ($SiO_4$) часть Si может замещаться на $Al^{3+}$, а кислород – на группы $(OH)^{-1}$(например, в гидрогранатах).

Кристаллическая структура сложная (рис. 1). Кубическая элементарная ячейка содержит 8 формульных единиц. Гранаты состоят из групп искаженных тетраэдров $SiO_4$, связанных по угловым узлам с октаэдрами типа $BO_6$ (с атомами алюминия и/или железа в центре). Промежутки заняты ионами двухвалентных металлов (например, Ca, $Fe^{2+}$, Mg, Mn), окруженных восемью атомами кислорода, которые находятся в узлах искаженного куба. Таким образом, кислород координируется двумя A, одним B, и одним Si катионом. Изолированные тетраэдры $SiO_4$ связываются через атомы кислорода с октаэдрическими группами $R^3+O_6$, образуя совместно подобие сложного каркаса, в пустотах которого размещены $R^{2+}$, оказывающиеся в окружении 8 атомов кислорода.

В группе граната выделяют: $Mg^-$, $Mn^-$, $Fe^{2+}$-гранаты – пироп $Mg_3Al_2[SiO_4]_3$, альмандин $Fe_3Al_2[SiO_4]_3$, спессартин $Mn_3Al_2[SiO_4]_3$; Ca-гранаты – гроссуляр $Ca_3Al_2[SiO_4]_3$, андрадит $Ca_3Fe_2[SiO_4]_3$, уваровит $Ca_3Cr_2[SiO_4]_3$ и

© Kirichenko V.G., Kovalenko O.V., 2012

очень редкий гольдманит $Ca_3V_2[SiO_4]_3$; гидрогранаты – например плазолит $Ca_3Al_2[SiO_4]_2$ $(OH)_4$, в которых группы $SiO_4$ замещаются на 4 группы (OH). В природе в пределах выделенных рядов широко распространены гранаты смешанного состава. Гранаты кристаллизуются в кубической системе, образуя изометрические кристаллы различных форм. Эти соединения способны кристаллизоваться и в других кристаллических системах (например, ромбической). Твердость (по минералогической шкале) зависит от состава и колеблется от 6,5 (у гидрогранатов) до 7,7 (у $Mg^-$, $Fe^-$, Mn-гранатов).

В последнее время получают синтетические соединения со структурой гранатов, например типа $CaJ_2Mn_2[GeO_4]_3$. Широкое распространение получили синтетические гранаты общей формулы $R_3^{III}M_2^{III}(X^{III}O_4)_3$, где $R^{III}$ – Y или другие редкоземельныеэлементы (РЗЭ), $M^{III}$, $X^{III}$ – Fe, Al, Ga. Они подобны по структуре природным гранатам $R^{II}{}_3M^{III}{}_2(SiO_4)_3$ с кубической кристаллической решеткой и пространственной группой Ia3d. Структура синтетических гранатов каркасная, построена из тетраэдров $XO_4$ и октаэдров $MO_6$, в полостях которых расположены полиэдры $RO_8$. Синтетические гранаты химически стойки, не растворимы в воде, обладают высокими твердостью и прочностью (табл. 1). Для синтетических гранатов характерен изоморфизм атомов R, M и X, вследствие чего существуют многочисленные разновидности этих соединений.

Железо-иттриевый гранат $Y_3Fe_2(FeO_4)_3$ – красно-бурые кристаллы (рис. 2); $\rho \sim 10^{14}$ Ом*см; температура Кюри 556 К; оптически прозрачен в области 1,1–1,5 мкм. Образуется при сплавлении оксидов Y и Fe. Монокристаллы выращивают из раствора $Y_2O_3$ (10,0% по массе) и $Fe_2O_3$ (20,4%) в расплавленной смеси PbO (36,8%), $PbF_2$ (27,1%) и $B_2O_3$ (5,5%) при снижении температуры от 1300 до 930 °С со скоростью 0,3–0,5 град/ч.

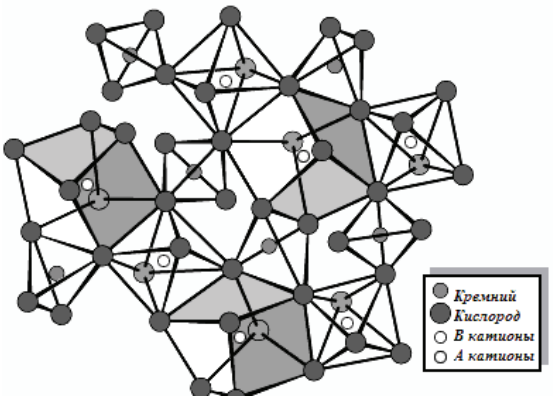



Рис. 1. Структура гранатов

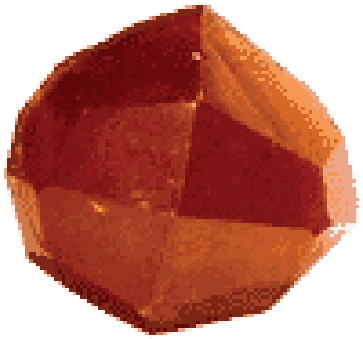


Рис. 2. Внешний вид кристалла ЖИГ

Иттрий-алюминиевый гранат $Y_3Al_2(A1O_4)_3$ оптически прозрачен в области 0,24–6,00 мкм. Образуется при сплавлении оксидов Y и A1 выше 1500 $^0$C. Наиболее распространенные методы выращивания монокристаллов: вытягивание из расплавленной стехиометрической смеси оксидов при 2000 °С со скоростью 0,5–1 мм/ч с использованием ориентированной затравки (диаметр до 60 мм, длина до 300 мм); горизонтально направленная кристаллизация в молибденовой лодочке со скоростью до 8 мм/ч; вертикально направленная кристаллизация.

Таблица 1.

Свойства гранатов

| Показатель | $Y_3Fe_2(FeO_4)_3$ | $Y_3Al_2(AlO_4)_3$ | $Gd_3Ga_2(GaO_4)_3$ | $Gd_3Sc_2(GaO_4)_3$* |
|---|---|---|---|---|
| Параметр решетки *a*, нм | 1,2376 | 1,2008 | 1,2382 | – |
| Т. пл., $^0$C | 1555 | 1930 | 1750 | 1750 |
| Плотность, г/см$^3$ | 5,7 | 4,55 | 7,09 | 6,49 |
| Температурный коэф. линейного расширения, $\alpha \cdot 10^6$, $K^{-1}$ | 14 | 8,2 | 9,6 | – |
| Твердость по Моосу<br>по Викерсу, ГПа | 7,5<br>12,062 | 8,5<br>13,2–13,9 | 7,5<br>10,98 | 7<br>– |
| $^nD$ | – | 1,81523 | 1,965 | 1,92 |
| Теплопроводность, Вт/(см•К) | 6,7–8,0 | 0,13 | – | 0,07 |
| * – Легирован $Nd^{III}$ и $Cr^{III}$ | | | | |

Иттрий-алюминиевый гранат, легированный Nd, – материал для рабочего тела лазеров с длиной волны генерируемого излучения 1,064 и 1,320 мкм. Гадолиний-галлиевый гранат $Gd_3Ga_2(GaO_4)_3$ – бесцветные кристаллы. Образуется из оксидов Gd и Ga выше 1400 °С. Монокристаллы выращивают методом Чохральского в иридиевых тиглях со скоростью вытягивания 3–6 мм/ч; диаметр нелегированных кристаллов до 100 мм, длина до 300 мм. Материал подложек для наращивания эпитаксиальных пленок ЖИГ. Гадолиний-скандий-галлиевый гранат $Gd_3Sc_2(GaO_4)_3$, легированный $Nd^{III}$ ($3{,}5 \cdot 10^{20}$ атомов в 1 см$^3$) и $Cr^{III}$($2 \cdot 10^{20}$ атомов), – кристаллы изумрудно-зеленого цвета. Получают сплавлением оксидов Gd, Sc и Ga. Монокристаллы выращивают по методу Чохральского из расплавленной смеси оксидов Gd, Sc и Ga выше 1500 °С со скоростью вытягивания 2–4 мм/ч в атмосфере $N_2$ (98%) и $O_2$ (2%).

Наиболее распространены железо-итриевый гранат (ЖИГ) $Y_3Fe_5O_{12}$ $[Y_3Fe_2(FeO_4)_3]$ (параметр решетки *a* =

12,376Å), $Gd_3Ga_4O_{12}$ [$GdGa_2(GaO_4)_3$], ($a$ = 12,382Å), группа Ia3d. Гранаты имеют каркасную структуру из тетраэдров $FeO_4$ и октаэдров $FeO_6$, в полостях которых расположены полиэдры $YO_8$.

**Спиновые волны в ЖИГ** [3-5]. В [5], в частности, приведен обзор теоретических и экспериментальных результатов, развития в магнитоупорядоченных средах параметрической неустойчивости (параметрического резонанса) результатом чего есть слабая волновая турбулентность. Параметрическая неустойчивость возникает при периодическом изменении во времени параметров среды или при распространении в ней монохроматических волн большой амплитуды. В ферромагнетиках это спиновые волны.

Это явление можно объяснить как параметрическую неустойчивость однородной прецессии по отношению к возбуждению пары спиновых волн с частотами $\omega_1$, $\omega_2$ и волновыми векторами $k_1$ и $k_2$ с условиями параметрического резонанса в непрерывной среде [6]. В отличие от известного условия параметрического резонанса для осциллятора $n\omega_p = 2\omega$, они имеют вид:

$$n\omega_p = \omega_1 + \omega_2, \qquad k_1 + k_2 = 0; \tag{1}$$

здесь $\omega_p$ – частота однородной прецессии. Поскольку $k_2 = -k_1$, при параметрической неустойчивости рождаются волны с равными и противоположными волновыми векторами. Число n – порядок неустойчивости. В [7] построена теория неустойчивости первого порядка монохроматической волны конечной амплитуды в нелинейной среде. Неустойчивость волны с частотой $\omega$ и волновым вектором k приводит к возбуждению двух волн:

$$\omega = \omega_1 + \omega_2, \qquad k = k_1 + k_2. \tag{2}$$

При введении в среду пространственно-однородного полем k = 0 или волной большой длины $k << k_1, k_2$ – то турбулентность можно считать статистически однородной с запретом распада первого порядка (2). Именно такая ситуация осуществляется в большинстве экспериментов по параметрическому возбуждению спиновых волн в ферромагнетиках. Экспериментальными объектами с высокими качествами являются монокристаллы ЖИГ ($Y_3Fe_5O_{12}$), обладающие магнитной добротностью $10^7$ (на частоте $10^6$ Гц) и слабым затуханием спиновых волн. Взаимодействие волн, удовлетворяющее условиям

$$\omega_k + \omega_{-k} = \omega_{k'} + \omega_{-k'}, \tag{3}$$

необходимо учитывать при объяснении экспериментально наблюдаемых эффектов удвоения частоты спиновых волн. Процессы типа (3) удобно изучать путем в рамках S-теории, при этом удалось продвинуться в изучении турбулентности спиновых волн и получить удовлетворительное количественное согласие с экспериментом.

В [5] указывается на несколько способов описания спин-волновой системы ферромагнетиков. Наиболее разработанным считается метод вторичного квантования. При параметрическом возбуждении магнонов их числа заполнения оказываются на много порядков больше единицы, и поэтому можно использовать классические уравнения движения для плотности магнитного момента:

$$\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial t} = g\left[\mathrm{M}, \frac{\delta W}{\partial \mathrm{M}}\right], \tag{4}$$

где $\frac{\partial W}{\partial \mathrm{M}}$ – вариационная производная от плотности энергии ферромагнетика, g – гиромагнитное отношение. Впервые для анализа параметрического возбуждения спиновых волн и возникающих при этом нелинейных явлений уравнение (4) использовалось Сулом. Наиболее пригоден общий метод, применимый к широкому классу слабо взаимодействующих волновых систем, а именно метод классического гамильтонова формализма с исходными каноническими уравнения движения:

$$\frac{\partial a(r,t)}{\partial t} == i\frac{\delta \mathrm{H}}{\delta a^*}, \tag{5}$$

где H – функция Гамильтона среды.

В случае ферромагнетиков можно показать, что уравнение (4) приобретает канонический вид (5) после замены переменных:

$$M_x + iM_y = \sqrt{2gM}\, a\sqrt{1 - g\frac{aa^*}{M}}\ ,\ M_z = M - gaa^*\ . \tag{6}$$

В переменных $a$, $a^*$ энергия ферромагнетика является функцией Гамильтона. Преобразования (6) являются классическим аналогом преобразований Голстейна–Примакова.

В кубическом ферромагнетике, намагниченном вдоль оси <111> или <100>,

$$A_k = gH - \omega_M N_z + \omega_{ex}(ak)^2 + |B_k| + \alpha\omega_a\ , \tag{7}$$

$$B_k = \frac{1}{2}\omega_M \sin^2\theta e^{2i\varphi}\ ,\ \ \alpha = \begin{cases} -1 & \mathrm{M}\|(100) \\ \dfrac{2}{3} & \mathrm{M}\|(111) \end{cases}; \tag{8}$$

здесь $\omega_M = 4\pi gM$ , $H$ – магнитное поле, $\omega_{ex}$ – «обменная частота» $(\hbar\omega_{ex} \approx kT_c)$, $\frac{\omega_a}{g}$ – поле кристаллографической анизотропии, θ и φ – полярный и азимутальный углы волнового вектора k в сферической системе коорди-

нат, ось z которой ориентирована вдоль $M$; $N_z$ – размагничивающий фактор.

Для кубических ферромагнетиков можно получить выражение:

$$\omega_k^L = \left[ gH - \omega_M N_z + \omega_{ex}\left(ak\right)^2 + \alpha\omega_a + \omega_M \frac{\sin^2\theta}{2} \right]^2 - \frac{\omega_M^2 \sin^4\theta}{4}. \quad (9)$$

**Нелинейные восприимчивости и методы их измерения**. Наиболее распространенный метод экспериментального изучения параметрического возбуждения спиновых волн основывается на поглощении волнами энергии накачки. Определим высокочастотную нелинейную восприимчивость ферромагнетика обычным образом [5]:

$$M_z(\omega_p) = \chi h,\ \chi = \chi' + i\chi''. \quad (10)$$

Мнимая часть восприимчивости $\chi''$ определяет величину поглощенной мощности:

$$W = \frac{\omega_p}{2}\chi'' h^2. \quad (11)$$

Применяя формулу (9) для потока энергии, втекающей в образец из окружающего поля накачки, получим:

$$\chi'' = \frac{2}{h}\sum_k |V_k||c_k|^2 \cos\left(\tilde{\psi}_k - \psi_k\right). \quad (12)$$

Аналогичное выражение получается для вещественной части восприимчивости:

$$\chi' = -\frac{2}{h}\sum_k |V_k||c_k|^2 \cos\left(\tilde{\psi}_k - \psi_k\right). \quad (13)$$

Поведение восприимчивостей $\chi'$ и $\chi''$ за порогом существенно зависит от механизма ограничения амплитуды. Так, для механизма нелинейного затухания следует:

$$\chi' = 0,\ \chi'' = \frac{2V^2}{\eta}\frac{h - h_1}{h}, \quad (14)$$

а для фазового механизма ограничения:

$$\chi' = \frac{2V^2}{S}\frac{h^2 - h_1^2}{h^2},\ \chi'' = \frac{2V^2}{|S|}\frac{h_1\sqrt{h^2 - h_1^2}}{h^2}. \quad (15)$$

Принципиальное различие диссипативного и фазового механизмов проявляется в поведении величины $\chi'$ ($\chi' = 0$ для диссипативного и $\chi' \sim \chi''$ для фазового механизмов). Экспериментальные результаты показывают, что вещественная восприимчивость $\chi'$ отлична от нуля и может быть порядка или даже больше, чем $\chi''$. Эти факты говорят в пользу фазового механизма ограничения.

Методика измерения магнитной восприимчивости в СВЧ диапазоне обычно использует реакцию высокодобротного электромагнитного резонатора на изменение состояния находящегося в нем образца. Возникающее при этом изменение добротности резонатора определяет мнимую часть восприимчивости $\chi''$, а изменение собственной частоты – вещественную часть $\chi'$. По сравнению со стандартной методикой, применяемой в опытах по магнитному резонансу, методика измерений нелинейных восприимчивостей при параллельной накачке имеет ряд специфических особенностей: импульсный режим СВЧ генератора, широкая область полей, в которых наблюдается поглощение энергии, зависимость $\chi'$ и $\chi''$ от мощности накачки. Последнее приводит к тому, что мощность генератора не является хорошей мерой амплитуды поля накачки. Поле в резонаторе более удобно определять по мощности на выходе резонатора; это позволяет автоматически учесть эффект обратного влияния спиновых волн на накачку, который является существенным вблизи порога даже при малом коэффициенте заполнения резонатора.

Типичная схема экспериментальной установки, применяемой для изучения явления параллельной накачки, показана на рис. 3. Принцип ее действия заключается в следующем. Невозмущенный резонатор (до порога параметрического возбуждения) обычно согласовывается с волноводным трактом таким образом, чтобы коэффициент отражения от резонатора был близким к нулю. При возбуждении спиновых волн ухудшается нагруженная добротность резонатора $Q_H$ и изменяется его собственная частота $\omega_0$, что приводит к появлению отраженного сигнала, по которому можно судить о величине $\chi'$ и $\chi''$. Величина $\chi''$ связана с коэффициентом отражения Г следующей формулой:

$$\chi'' = \frac{1}{AQ_H}\frac{|\Gamma|_{\omega-\omega_0}}{1 - |\Gamma|_{\omega-\omega_0}}, \quad (16)$$

где $A = 2\pi \int_{обр} h^2 dV \Big/ \int_{рез} h^2 dV$ – коэффициент заполнения резонатора.

Для настройки в резонанс ($\omega = \omega_0$) производится небольшое изменение частоты генератора (или собственной частоты резонатора) по минимуму коэффициента отражения; величина этого изменения $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ непосредственно определяет вещественную восприимчивость. По ряду причин, главной из которых является неточность в определении коэффициента $A$, погрешность измерения абсолютных величин $\chi'$ и $\chi''$ обычно составляет

порядка 20–40%.

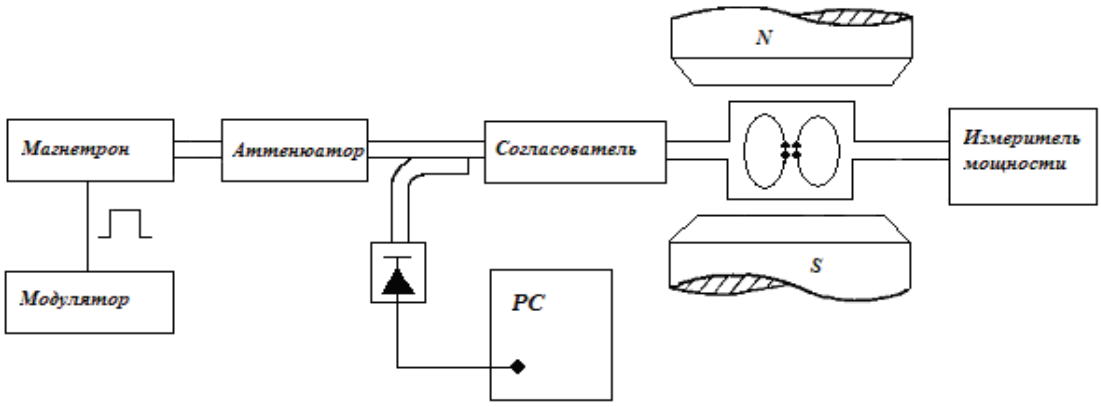



Рис. 3. Схема установки для параметрического возбуждения спиновых волн

**Спиновые волны и хаос в тонких магнитных пленках ЖИГ.** На магнитных тонких пленках ЖИГ, выращенных методом жидкостно-фазной эпитаксии, изучались автомодуляция и хаос при нестабильности II порядка [8]. Пленки имели толщину 0,7÷1,3 мкм. Образцы, помещались в резонатор спектрометра с частотой 10 ГГц. С увеличением мощности накачки область наблюдения хаоса смещалась в сторону меньших магнитных полей, и наблюдался постепенный переход от хаоса к стабильным осцилляциям, затем бифуркации и снова хаос. При 4,2 К эти явления наблюдались при мощности накачки на 30 дБ меньшей, чем при 300 К. Для анализа одномерные временные сигналы с помощью специальной методики преобразовывались в многомерную фазовую поверхность [9]. Объяснение результатов дано с помощью S-теории, распространенной на случай больших углов прецессии [5]. При проведении эксперимента на установке, представляющей собой СВЧ генератор со спин-волновой линией задержки в цепи обратной связи получены результаты по переходу от регулярной к стохастической автомодуляции поверхностных спиновых волн. Обнаружено, что переход к хаосу осуществляется в соответствии со сценарием последовательности бифуркаций удвоения периода. Определены фрактальные размерности и энтропия Колмогорова для различных режимов. [11].

В [12] проанализированы процессы возникновения и исчезновения спиральных доменов на примере одного спирального домена, не взаимодействующего с другими доменами, то есть окруженного только доменным хаосом (рис. 4).

Сначала из хаоса (рис. 4а) появляется небольшой двухвитковый спиральный домен – зародыш (рис. 4б). Далее увеличиваются диаметр и число витков. На рис. 4в их около десяти, картина четкая, контрастная, в форме почти идеальной спирали Архимеда. Но уже появились первые искажения на внешних витках. С течением времени этот домен разрастается и накручивает более тридцати витков (рис. 4г). Однако по прошествии некоторого времени начинается резкая потеря витков и разрыхление центральной части спирального домена (рис. 4д). И еще через 0,05 секунды от него остаются остатки (рис. 4е).

Динамика намагниченности в общем случае описывается базовым уравнением нелинейной ферромагнитодинамики – уравнением Ландау–Лифшица [13]:

$$\frac{1}{\gamma}\frac{\partial \mathrm{M}}{\partial t} = -\left[\mathrm{M}\times \mathrm{H}_{eff}\right] - R\,; \tag{17}$$

$$\mathrm{H}_{eff} = -\frac{\partial F}{\partial \mathrm{M}} + \sum_{p=1}^{3}\frac{\partial}{\partial x_p}\left[\frac{\partial F}{\partial\left(\dfrac{\partial \mathrm{M}}{\partial x_p}\right)}\right]; \tag{18}$$

$$F = w_{обм} + w_{аниз} + w_{му} + w_{мет} + w_{зеем} \tag{9}$$

Затухание R в форме Ландау-Лифшица:

$$R = \frac{a}{|\mathrm{M}|}\left[\mathrm{M}\times\left[\mathrm{M}\times \mathrm{H}_{eff}\right]\right] \tag{20}$$

Одно из основных свойств – сохранение абсолютной величины магнитного момента:

$$|\mathrm{M}|^2 = M_x^2 + M_y^2 + M_z^2 = M_0^2 \tag{21}$$

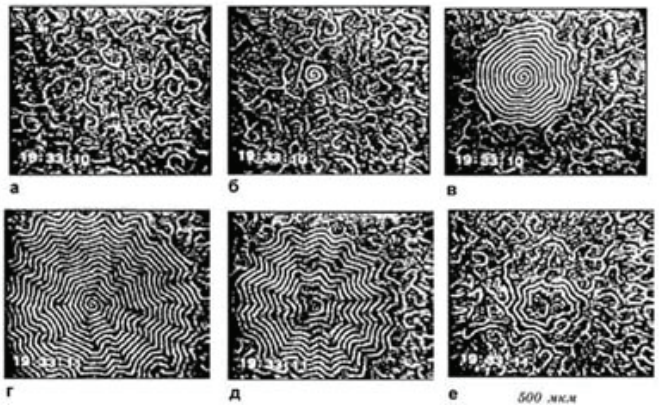



Рис. 4. Возникновение, формирование (а, б, в) и разрушение (г, д, е) динамического спирального домена в гармоническом магнитном поле с частотой 2,56 кГц

Рассмотрим переход от регулярной к хаотической автомодуляции интенсивных поверхностных спиновых волн в пленках железо-иттриевого граната (ЖИГ) в условиях распадной неустойчивости первого порядка (2) [5,15]. Динамика намагниченности в однородно намагниченном тонком слое в общем случае описывается уравнением Ландау–Лифшица, которое в сферической системе координат представляется в виде следующей системы уравнений [16]:

$$\dot{\varphi}M\sin\theta = \gamma\frac{\partial F}{\partial\theta} - \frac{\lambda}{M}\frac{1}{\sin\theta}\frac{\partial F}{\partial\varphi},$$
$$\dot{\theta}M = -\frac{\lambda}{M}\frac{\partial F}{\partial\theta} - \gamma\frac{1}{\sin\theta}\frac{\partial F}{\partial\varphi}, \qquad (22)$$

где γ – гиромагнитное соотношение, λ – параметр диссипации. Плотность свободной энергии для отдельного магнитного слоя выражается как

$$F = -\mathrm{M}\left(\mathrm{H}+h\right) - 2\pi M^2\sin^2\theta + F_a\left(\theta,\varphi\right) + F_u\left(\theta,\varphi\right), \qquad (23)$$

где M – вектор намагниченности, направление которого определяется полярным углом θ, отсчитываемым от нормали к пленке, и азимутальным углом φ, H и h – внешние статическое и переменное магнитное поля, $F_a$ и $F_u$ – вклады, определяемые энергией кристаллографической анизотропии и энергией анизотропии, индуцированной ростом пленки, соответственно.

В качестве примера рассмотрим длинноволновые слабонелинейные спиновые возбуждения в тонких ферромагнитных пленках (рис. 5). Нелокальное уравнение эволюции

$$\partial_t\mathrm{M} = -|\gamma|\left[\mathrm{M}\times\left(\mathrm{H}_0 + H^{(m)} + \alpha\Delta\mathrm{M}\right)\right];\ \partial_t + \frac{\partial}{\partial t}; \qquad (24)$$

где $\mathrm{M}^2 = M_0^2$; $M_0$ – намагниченность насыщения.

Граничные условия: $\partial_z\mathrm{M} = \left|_{z=\pm\frac{d}{2}} = 0;\ \mathrm{M}\left(\xi,z\right) = \mathrm{M}\right.$

Определим поля («+» – поле внутри пластины; «–» – поле вне пластины) с помощью уравнений магнитостатики:

$$rot\mathrm{H}^{(m)} = 0;\ \ div\left[\mathrm{H}^{(m)} + 4\pi\mathrm{M}\right] = 0;\ \left[\mathrm{H}_+^{(m)}\right]_t = \left[\mathrm{H}_-^{(m)}\right]_t;\ \left[\mathrm{H}_+^{(m)}\right]_\nu + 4\pi\mathrm{M}_\nu = \left[\mathrm{H}_-^{(m)}\right]; \qquad (25)$$

$$\mathrm{H}^{(m)} = -grad\varphi\left(r\right);\ \varphi = \int_V dr'\mathrm{M}\left(r'\right)\frac{\partial}{\partial X_t'}\frac{1}{\left|r-r'\right|}; \qquad (26)$$

В результате получаются 3 ветви спектра (рис. 6): 1. внутридоменные или d-магноны; 2. внутриграничные (локализованные на доменной границе) двумерные возбуждения, w-магноны или воллоны, связанные с колебанием границы как единого целого; 3. пристеночные (nw-магноны)

Структура ферромагнетик-диэлектрик-металл на основе пленки ЖИГ – главный функциональный элемент при экспериментальном наблюдении солитонов микроволновой огибающей [17].

Для исследования процессов автомодуляции применяют установку, представляющую собой СВЧ генератор со спин-волновой линией задержки в цепи обратной связи. Условия эксперимента должны соответствовать распадной неустойчивости спиновых волн первого порядка. В экспериментах использовали эпитаксиальные пленки ЖИГ толщиной от 10 до 43 мкм с намагниченностью насыщения 1750 Гс и линейным параметром диссипации порядка 0,5 Э. Возбуждение и прием поверхностных спиновых волн, распространяющихся под металлическим экраном, прижатым к поверхности пленки, осуществлялись с помощью микрополосковых преобразователей шириной 30 мкм, расстояние между которыми составляло 10 мм (рис. 7). В результате проведения экс-

перимента возникали следующие проблемы интерпретации экспериментальных данных по наблюдению солитонов микроволновой огибающей в пленках ЖИГ: наличие квадратичной зависимости скорости распространения нелинейной волны от ее амплитуды и преобразование симметричного импульса при прохождении его через пленку ЖИГ в антисимметричный.

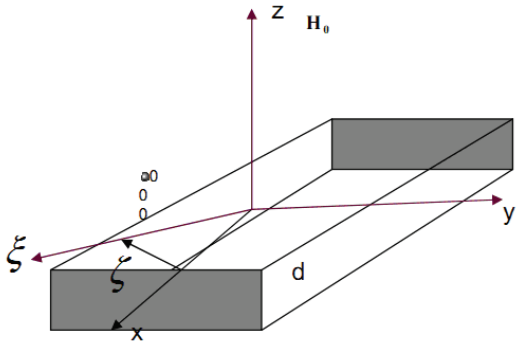



Рис. 5. Геометрия задачи в случае перпендикулярно намагниченной пластины

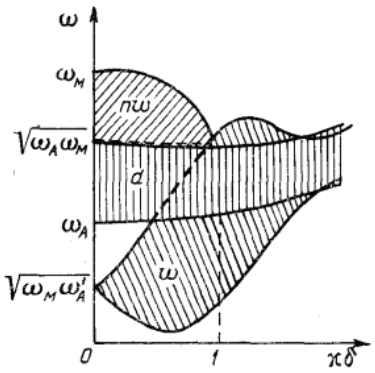



Рис. 6. Спектр спиновых волн в ферромагнетике с изолированной доменной границей блоховского типа

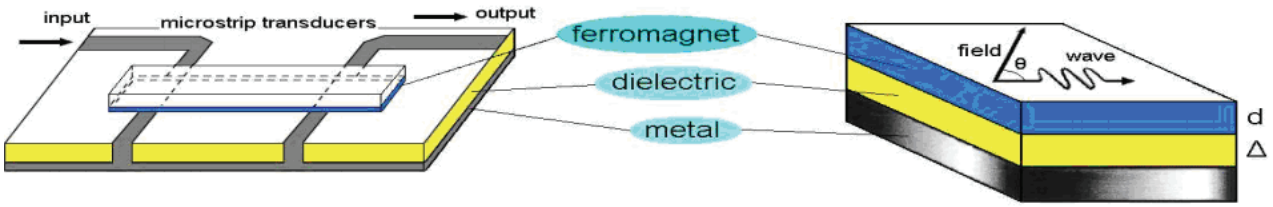



Рис. 7. Экспериментальное наблюдение солитонов микроволновой огибающей

Одним из проявлений нелинейной динамики намагниченности при больших углах однородной прецессии является эффект удвоения частоты, имеющий место при линейной поляризации высокочастотного поля. В случае прецессии в поперечном СВЧ-поле, как правило, ограничиваются рассмотрением данного нелинейного эффекта [16]. Особый интерес представляют свойства монокристаллических тонкопленочных структур вблизи критических значений полей, определяющих ориентационные фазовые переходы, при которых изменение намагниченности в слоях имеет скачкообразный характер, например в феррит-гранатовых пленках и металлических многослойных структур.

Основное внимание уделяется анализу новых прецессионных режимов в пленках типа (111) и (100) [15]. Показано, что ориентация кристаллографических осей существенным образом определяет траекторию прецессии вектора намагниченности. Эпитаксиальные пленки феррит-граната являются монокристаллическими слоями с кубической кристаллической решеткой. Для пленок типа (111) принимается, что кристаллографическая ось [111] совпадает с осью *x*, направленной вдоль нормали к поверхности пленки, оси $[11\bar{2}]$ и $[\bar{1}10]$ совпадают с осями *y* и *z*, углы θ и φ отсчитываются от осей *x* и *y* соответственно. При такой ориентации кристаллографических осей плотность свободной энергии кристаллографической анизотропии определяется выражением.

$$F_a = K_1\left(\frac{1}{4}\sin^4\theta + \frac{1}{3}\cos^4\theta + \frac{\sqrt{2}}{3}\sin^3\theta\cos\theta\cos 3\varphi\right), \qquad (27)$$

а плотность свободной энергии ростовой анизотропии имеет вид

$$F_u = K_u \sin^2\theta, \qquad (28)$$

где $K_1$ и $K_u$ – соответственно константы кристаллографической и индуцированной ростом пленки анизотропии. Внешние статическое и переменное магнитные поля считаются ортогональными ($H \perp h$).

Как следует из приведенных соотношений, существенное влияние на динамику намагниченности в прецессионном движении, наряду с ориентацией и величиной подмагничивающего поля, величинами полей индуцированной и кристаллографической анизотропии, оказывают также поляризация, амплитуда и начальная фаза СВЧ-поля. При малых амплитудах СВЧ-поля ($h << H_{eff}$, где $H_{eff}$ – эффективное магнитное поле) на частоте $\omega = \omega_r$ имеет место линейный ферромагнитный резонанс, при котором углы прецессии малы и временные зависимости θ(t) и φ(t) могут быть найдены из линеаризованных (по малым отклонениям намагниченности от положения равновесия) уравнений движения. В этом случае частота резонансной прецессии магнитного момента относительно его равновесной ориентации определяется выражением

$$\omega_r = \gamma H_{eff} = \frac{\gamma}{M\sin\theta}\left(F_{\theta\theta}F_{\varphi\varphi} - F_{\theta\varphi}^2\right)^{\frac{1}{2}}, \qquad (29)$$

где значения вторых производных от плотности свободной энергии берутся для равновесных углов $\theta_0$ и $\varphi_0$, полученных из условий $\partial F/\partial\theta = 0$, $\partial F/\partial\varphi = 0$ [15].

При дальнейшем рассмотрении можно ограничиться случаем статического поля H, направленного перпендикулярно к поверхности пленки. При константах анизотропии $K_1$ и $K_u$, отвечающих равновесной ориентации вектора M вдоль нормали к пленке ($\theta_0 = 0$), частота резонансной прецессии выражается в виде $\omega_r = \gamma H_{eff}(0)$, где эффективное поле определяется как

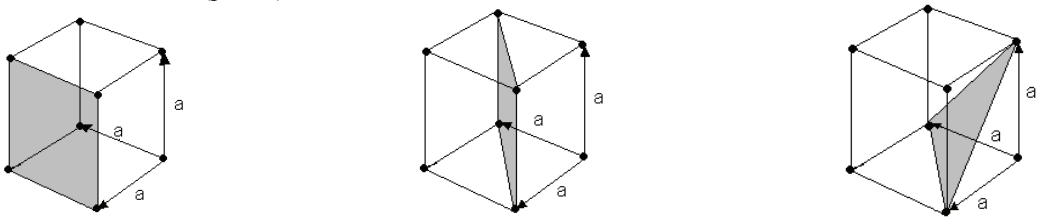
$$H_{eff}(0) = H - 4\pi M + \frac{2}{M}\left(K_u - \frac{2}{3}K_1\right). \qquad (30)$$

Принимается, что переменное поле является линейно поляризованным и лежит в плоскости *yz*. В этом случае существует несколько режимов прецессионного движения намагниченности, определяемых величиной статического поля H (или частотой прецессии ω).

Для выявления особенностей прецессионного движения вектора M необходимо определить энергетический пространственный рельеф, задаваемый функцией $F(\theta,\varphi)$. Зависимость $F(\varphi)$ имеет период, равный $2\pi/3$, в соответствии с расположением подмагничивающего поля и трех кристаллографических осей типа {100}. Для направления $\varphi = \theta = 0$ (вектор M параллелен нормали к пленке) при величине подмагничивающего поля $H > H_0$ зависимость $F(\theta)$ имеет локальный минимум, который с увеличением H становится более выраженным. Для исследования указанных зависимостей и дальнейшего анализа использовались параметры, близкие к параметрам реальной феррит-гранатовой пленки: $4\pi M = 214{,}6$ Гс, $\gamma = 1{,}755 \times 10^7$ (Э с)$^{-1}$, $\lambda = 3 \times 10^6$ с$^{-1}$, $K_u = -10^3$ эрг см$^{-3}$, $K_1 \approx -10^3$ эрг см$^{-3}$ [15, 18]. Значение $H_0 = 245$ Э. Кроме минимума в направлении нормали имеются также три локальных минимума, которым соответствуют углы $\varphi = 0, 120^o, 240^o$ и $\theta \approx 35 - 41^o$. С увеличением подмагничивающего поля эти минимумы несколько смещаются к нормали, становясь менее выраженными, и исчезают при $H \approx 279$ Э.

При малых подмагничивающих полях и низких частотах [19], отвечающих условию линейного резонанса (для исследуемой пленки $H < 279$ Э, $\omega_r < 4 \times 10^8$ с$^{-1}$), ось прецессии совпадает с нормалью только при малых амплитудах СВЧ-поля ($h \le 0{,}04$ Э). Амплитуда прецессии при этом составляет несколько градусов ($\phi \approx 2^o$).

В [20] было обнаружено, что при параллельной накачке в определенных условиях наблюдается не установление стационарного режима, а колебания намагниченности относительно среднего ее значения. Особенно странной казалась чувствительность к кристаллографической ориентации намагниченности в ЖИГ (кристалле со слабой кубической анизотропией). Интенсивность автоколебаний при направлении намагниченности вдоль оси (111) в сто раз превышает их интенсивность при направлении намагниченности по оси (100). Возможно, частично, такое поведение автоколебаний связано с различием в геометрии задач в этих направлениях и разной ретикулярной плотностью узлов соответствующих типов и различием в расположении узлов в выбранных кристаллографических плоскостях, перпендикулярных направлениям [111] и [100] (рис. 8) приводит к различной симметрии СВЧ-сигнала (рис. 9).




(010) (110) (111)

Рис. 8. Направления и плоскости в прямой кубической решетке

В результате реализации рассмотренных динамических режимов в широком диапазоне частот могут быть достигнуты высокие амплитуды колебания намагниченности, определяемые главным образом ориентациями равновесных состояний и относящиеся к автоколебательным режимам [15].

**Стохастическая прецессия в феррит-гранатовых пленках.** В последнее время значительно возрос интерес к исследованию различного рода колебательных систем, для которых характерны наряду с регулярными стохастические динамические режимы. Это связано не только с необходимостью подавления хаоса и перевода первоначально хаотических систем посредством достаточно слабых воздействий в требуемый регулярный динамический режим [15], но и с возможным использованием управляемого хаоса в новейших технологиях. Результаты таких исследований имеют непосредственное отношение, в частности, к задачам обработки (записи, кодирования и расшифровки) информации [21–27]. Анализ динамика подобных систем возможен на основе рассмотрения их фазовых траекторий, наиболее распространенными из которых являются стохастические или квазистохастические аттракторы. Стохастические аттракторы являются математическим образом наблюдаемого развитого хаотического поведения физической системы, обладая при этом свойством перемешивания [28, 29].

Для более подробного анализа стохастических динамических режимов, а также переходов между ними и регулярными режимами в однородно намагниченных структурах при указанных условиях остановимся на

пленках типа (111) и (100) (рис. 9) [30]. Одновременное рассмотрение пленок двух типов позволяет выявить влияние кристаллографической анизотропии материала на установление данных режимов и проанализировать их общие особенности. В нормально подмагниченных ферритовых пленках с кубической кристаллографической анизотропией автоколебательные и стохастические режимы прецессии намагниченности устанавливаются при условиях, отвечающих возникновению ориентационной бистабильности на частотах, значительно меньших частоты линейного резонанса. Амплитуда данных режимов определяется главным образом ориентациями намагниченности в равновесных состояниях. При этом изменение ориентации осей кристаллографической анизотропии качественно изменяет реализуемые динамические режимы: форму аттракторов, соответствующие им частотные диапазоны, а также влияет на возможность управления нелинейными, в том числе стохастическими, режимами с помощью внешних полей.

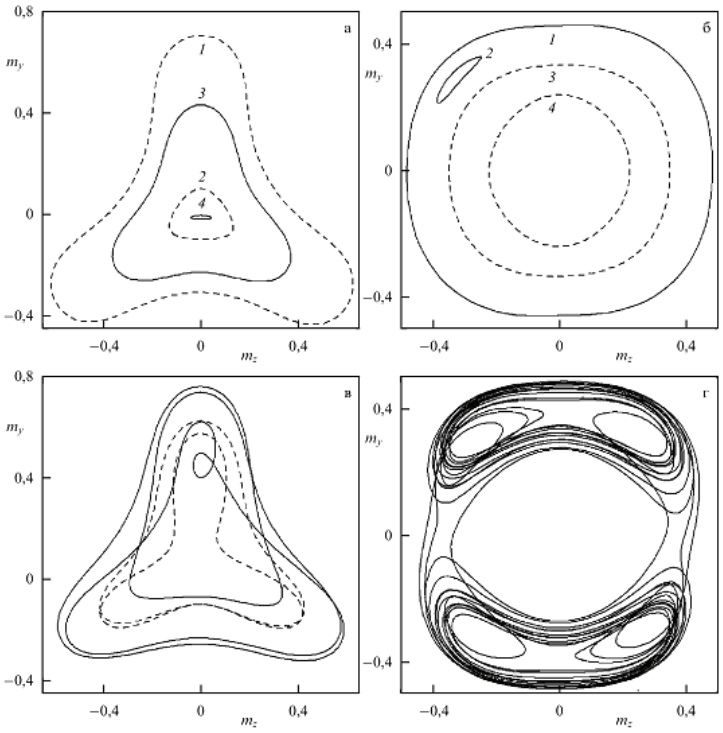



Рис. 9. Проекции траекторий прецессионных режимов, реализующихся в пленках типа (111) (а, в) и (100) (б, г) в условиях динамической бистабильности (а, б) при начальной фазе СВЧ-поля $\zeta=0$ (кривые 1, 3), $\zeta=\pi/2$ (кривые 2, 4) имеющих период (в, г), кратный периоду возбуждающего переменного поля

В рамках двухпараметрической модели исследована анизотропия феррит-гранатовых пленок [30]. Показано, что в случае произвольной ориентации поверхности пленки ее анизотропия является двуосной. Определены направления осей легкого, среднего и трудного намагничивания как функции угла разориентации и малой кубической анизотропии. Показано, что область существования однородных состояний в магнитном поле ограничена наклонной астроидой. Произведен расчет тензора магнитной восприимчивости, а также вычислены частота ферромагнитного резонанса и закон дисперсии спиновых волн. Разориентация подложки приводит к появлению наклонной анизотропии, которая оказывает влияние как на статические, так и на динамические свойства пленок. В частности, ось легкого намагничивания (ОЛН) оказывается наклонной, а в плоскости, перпендикулярной ОЛН, обнаруживается ромбическая анизотропия. Уравнением кривой лабильности является астроида, ось которой совпадает с ОЛН. Намагничивание пленки вдоль нормали или в базисной плоскости происходит в наклонных полях. В этих же полях обращается в нуль частота ФМР. С помощью ферромагнитного резонанса показано, что по признаку экспериментально наблюдаемой кубической магнитной анизотропии пленки железо-иттриевого граната, полученные жидкофазной эпитаксией и лазерным напылением на (111)-подложке ГГГ следует считать монокристаллическими [30]. Напыленная пленка состоит из плотно упакованных монокристаллических фрагментов с одинаковой для всех пространственной ориентацией кристаллической решетки, которые разделены границами, характеризующимися некоторым атомно-неупорядоченным состоянием. Это хорошо совпадает с предложенной выше моделью (рис. 8) учета различной ориентации кубической решетки и влиянием этого на поведение намагниченности в пленках различной ориентации (рис. 9).

**Мессбауэровская спектроскопия ЖИГ и пленочных структур.** Степень совершенства пленок на ГГГ определяется способом получения пленок, чистотой исходных материалов и степенью кристаллического совершенства монокристаллических пластин ГГГ [32]. Методы ионно-лучевой, плазменной и лазерной технологии широко применяются для получения тонких пленок ЖИГ [33-35]. Формирование пленок при участии частиц с высокими энергиями (на три-четыре порядка выше энергии частиц, участвующих в термических процессах осаждения) позволяет выращивать монокристаллические пленки ферритов с наноразмерными структурами, малыми переходными слоями, расширенными границами катионных замещений составов гранатов, расширенными границами несоответствия параметров решеток подложки и пленки. Но после синтеза пленки ЖИГ могут оказаться в аморфном состоянии. При этом неизбежны диффузионные процессы, как в аморфной пленке, так и в аморфном слое подложки, которые могут привести к увеличению толщины переходного слоя к существенной неоднородности химического и фазового состава пленки. Поэтому требуется поиск оптимального режима отжига, стимулирующего кристаллизацию и формирование требуемого структурно-фазового и магнитного состояния материала пленки для последующего ее использования в изделиях микроэлектроники.

Одним из эффективных методов обработки эпитаксиальных феррит-гранатовых пленок является ионная имплантация (ИИ) [36], который является универсальным средством для преобразования структуры доменных границ цилиндрических магнитных доменов (ЦМД) и подавления жестких ЦМД. Эффективность ионной имплантации определяется величиной изменения энергии магнитной анизотропии $\Delta K_и$ в слое феррит-гранатовой пленки [7] за счет возникновения значительной концентрации радиационных повреждений, вызывающих действие сжимающих напряжений. Ответственным за изменение энергии анизотропии при ИИ является механизм магнитострикции, инициируемый действием сжимающих напряжений. Сложная взаимосвязь между изменением магнитной анизотропии и структурой ИИ слоя раскрыта еще далеко не полностью. В работе [36] экспериментально установлена корреляция между изменением структуры и магнитных свойств поверхностного слоя феррит-гранатовой пленки $(EuSmLuCa)_3(FeGe)_5O_{12}$, подвергнутой воздействию ИИ. Методами рентгеновской двукристальной дифрактометрии и мессбауэровской спектроскопии конверсионных электронов (МСКЭ) показано, что при энергии ионов Ne с энергией E = 350 кэВ, оптимальной является доза Д = $6\cdot10^{13}$ $см^{-2}$. Однако созданный при этом ионно-имплантированный слой обладает недостаточной стабильностью введенных при имплантации повреждений и приобретенных магнитных свойств. При отжиге возможно разрушение анизотропии типа «легкая плоскость» в этом слое, сопровождающееся потерей эффективности действия слоя.

В работах [37-39] приведены мессбауэровские данные по пленкам ферритов-гранатов, полученные различными способами напыления. Пленки сразу после приготовления находятся в парамагнитном состоянии. Спектры МСКЭ представлены уширенными дублетами, с несколько отличающимися параметрами дублета для различных образцов (рис. 10).

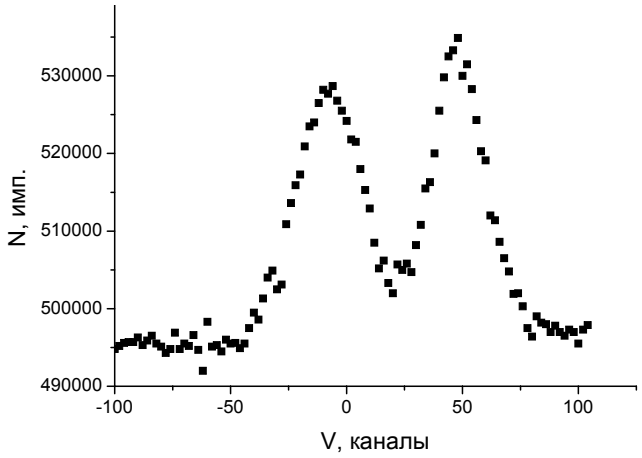



Рис. 10. МСКЭ спектр рассеяния аморфной пленки ЖИГ после осаждения на подложку ГГГ в режиме 2

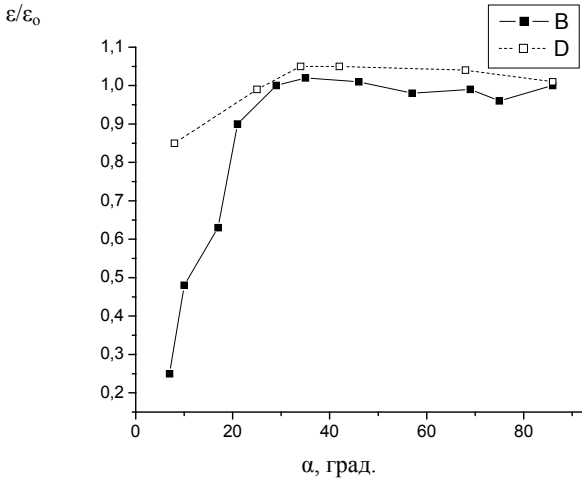



Рис. 11. Зависимости относительной величины эффекта рассеяния $\varepsilon/\varepsilon_O$ спектров пленки ЖИГ(□) и реперных спектров α-Fe (■) от угла падения γ-квантов

Магнитное сверхтонкое расщепление спектров МСКЭ тонких пленок ЖИГ сразу после приготовления отсутствует, поэтому можно сделать вывод, что спектр относится к парамагнитной аморфной фазе, в слое которой формируются после напыления слои феррит-гранатов. Спектры рассеяния парамагнитных ферритов-гранатов можно представить в виде суперпозиции двух дублетов, относящимся к положениям ионов $Fe^{3+}$ в октаэдрических узлах и в тетраэдрических узлах. Квадрупольное расщепление $\Delta_{эксп}$ для атомов железа в октаузлах 1 мм/с, для тетра-узлов 0,3+0,5 мм/с. Так как величина $\Delta_{эксп}$ близка к величине для тетраэдрических положений, то можно сделать вывод, что в случае аморфного состояния октаэдры, искажены значительно сильнее, чем тетраэдры, поскольку линии спектра октаэдрических положений имеют слабую интенсивность.

По данным спектрометрии резерфордоского обратного рассеяния (СРОР) на поверхности пленки ЖИГ обнаружен тонкий слой гадолиния. Селективность анализа по глубине слоя достигается использованием МСКЭ. Выход электронов конверсии выражается площадью под спектром МСКЭ для данного угла падения. На рис. 11 представлена такая зависимость для реперного образца, в поверхностном слое которого сегрегация атомов Fe заранее исключена. Виден крутой спуск реперной кривой в интересующем диапазоне толщин 0,1−0,05мкм. Подобная зависимость для пленки ЖИГ имеет совершенно другой характер, не обозначая крутого спада характерного для однородного по толщине слоя распределения железа, что свидетельствует о сегрегации железа.

Термический отжиг полученных пленок ЖИГ в диапазоне 970–1070 К приводит к кристаллизации аморфных слоев и переходу ЖИГ в магнитоупорядоченное состояние, при этом пленки являются поликристаллическими (рис. 12). Уширенный дублетный спектр состоит из дублетов, соответствующих $Fe^{2+}$ и $Fe^{3+}$ (в тетра- и октаэдрических положениях). Узлы с ионами $Fe^{2+}$ появляется из-за дефицита кислорода, а также наличия четырехвалентных катионов примеси. Можно предположить, что имеется вклад в процессы распыления в виде кластеров. Кластеры объединяют ≈ 20% атомов общего потока [40]. Из соотношения интенсивностей спектральных линий магнитоупорядоченной фазы можно оценить средние значения угла Θ между нормалью к поверхности пленки и направлением магнитного момента атомов железа, совпадающим с направлением ОЛН. Угол Θ

определяется с помощью формулы $\theta = \arccos\sqrt{(4-3\beta)/(4+3\beta)}$, где $\beta = J_2+J_5/J_1+J_6$; $J_1$, $J_2$, $J_5$, $J_6$ – соответственно интенсивности первой, второй, пятой и шестой спектральных линий мессбауэровского шести линейчатого спектра рассеяния пленки ЖИГ, отсчитываемых слева направо на спектре (рис. 14). Значение угла между нормалью к поверхности пленки и направлением ОЛН для пленки $Y_3Fe_5O_{12}$ составляет $60^0$–$90^0$ в зависимости от условий обработки.

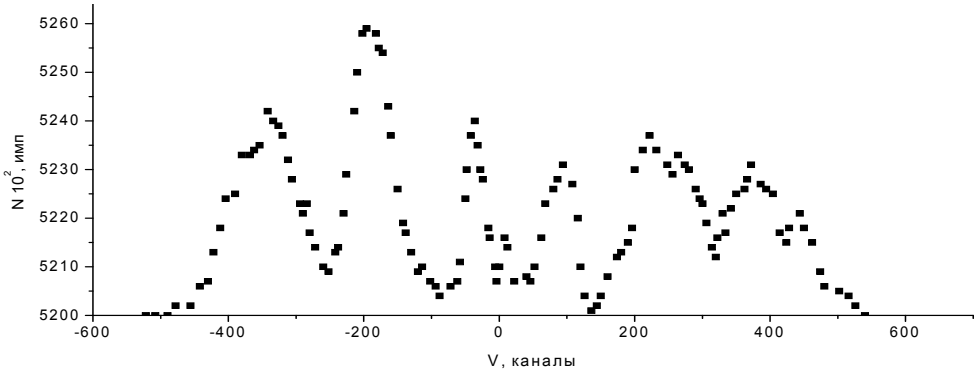



Рис. 12. МСКЭ спектр рассеяния магнитоупрядоченной пленки ЖИГ после отжига при 970 К

В [41] обнаружено подобное немонотонное поведение коэрцитивной силы эпитаксиальных пленок феррит-гранатов при изменении относительного рассогласования периодов решетки пленки и подложки ГГГ в диапазоне 0,5–0,85%. Максимальное значение коэрцитивной силы достигается за счет локализованных напряжений преобразований дислокационной сетки с периодом сравнимым с шириной доменных границ. В [42] показано, что магнитные свойства и сложные формы магнитооптических петель гистерезиса пленок могут определяться свойствами интерфейса пленка $(BiSmLu)_3(FeGaAl)_5O_{12}$ – подложка ГГГ ориентации (111). В некоторых пленках вблизи температуры компенсации обнаружен эффект «опрокидывания» магнитного момента подрешеток, сопровождающийся последующим температурным магнитным гистерезисом.

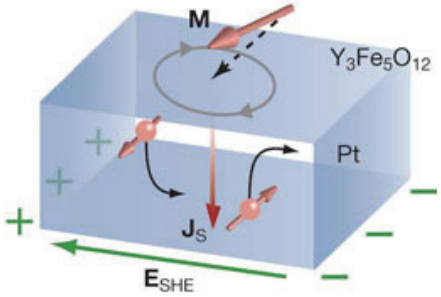



Рис. 13. Схема, иллюстрирующая обратный спиновый эффект Холла: ЭДС $\boldsymbol{E}_{SHE}$ генерируется спиновым током $\boldsymbol{J}_S$ в слое Pt, возникающим вследствие динамики намагниченности $\boldsymbol{M}$ в слое $Y_3Fe_5O_{12}$.

Разработаны методы получения и исследованы условия кристаллизации магнитоактивных компонентов магнитофотонных кристаллов, получаемых методом реактивного ионно-лучевого распыления на монокристаллическую (ГГГ), поликристаллическую (ситалл) и аморфную ($SiO_2$) подложки [43]. Для анализа приведенных экспериментальных данных и значительного числа результатов не отраженных в данном сообщении необходима разработка новых теоретических моделей. Например, в [44] на основе спинового S-гамильтониана Гейзенберга представлена модель спин-волновых спектров в тонких пленках ЖИГ, которая в отличие от феноменологического подхода Гинзбурга-Ландау, позволяет прямо получить результаты о взаимодействии спиновых волн. Модель позволит более точно учесть зависимость от момента параметров спин-волновых взаимодействий и распространение спиновых волн, в том числе в принципиально новых устройствах спинтроники. Так, в [45] осуществлен перенос информации спиновой волной, т.е. возбуждениями спинов локализованных электронов. Информация переносилась в пленке железо-иттриевого граната толщиной 1,3 мкм между двумя платиновыми пленками, напыленными на пленку граната (рис.13). Расстояние между полосками составляло 1 мм. На входной ток в пленке-излучателе плотностью 10 кА/см$^2$ пленка-приемник откликалась напряжением в 1 нановольт. В среде с большим затуханием спиновых волн эффект отсутствовал. Намагничивая гранатовую пленку в различных направлениях, спиновые волны либо возбуждаются, либо нет.

## ВЫВОДЫ

Представлен краткий обзор результатов исследования формирования структур ферромагнетиков для магнитооптических устройств на примере ЖИГ. Кратко рассмотрены теоретические и экспериментальные результаты о развитии в магнитоупорядоченных средах параметрической неустойчивости Рассмотрен переход от регулярной к хаотической автомодуляции интенсивных поверхностных спиновых волн в пленках ЖИГ в условиях распадной неустойчивости первого порядка Кратко рассмотрены процессы взаимодействия спиновых волн с железо-иттриевыми гранатами, в том числе в тонкопленочных структурах. Проанализированы возможности применения мессбауэровской спектроскопии при определении структуры и фазового состава феррит-гранатов и связи параметров структуры с накачкой спиновых волн. Обнаружена существенная структурно-композиционная неоднородность аморфных парамагнитны пленок железо-иттриевого граната ЖИГ на монокристаллических подложках гадолиний-галлиевого граната, обусловленная достаточно высокой

степенью несовершенства структуры и образованием аморфного слоя на поверхности подложек ГГГ при ионно-лучевом осаждении. Аморфные пленки феррит-гранатов, трансформируются в кристаллические магнитоупорядоченные слои при последующем отжиге выше 900 К. Обнаружен максимум содержания железа и иттрия на глубине около 500 Å.

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Smit Ya., Veyn Kh. Ferrity. - Per. s angl. - M., 1962. – 504 s.
2. Krupichka S. Fizika ferritov i rodstvennykh im magnitnykh okislov. - Per. s nem. -T. 1. - M., 1976. – 359s.
3. Monosov Ya.A. Nelineynyy ferromagnitnyy rezonans. - M.: Nauka, 1971. -210 c.
4. L'vov V.S. Nelineynye spinovye volny. - M.: Nauka, 1987.- 272 c.
5. Zakharov V.E., L'vov V.S., Starobinets S.S. Turbulentnost' i spinovye volny za porogom ikh parametricheskogo vozbuzhdeniya // Uspekhi fiz. nauk.– 1974.– 114.– S. 609–654.
6. Suhl H. Effective nuclear spin interactions in ferromagnets //Phys. Rev. –1958. –Vol. 109 (2). –P. 106.
7. Opaevskii B.H., Sagdeev R.3. Ob ustoychivosti ustanovivshikhsya prodol'nykh kolebaniy plazmy //ZhTF. –1962. –T. 32. –S. 1291.
8. Wigen P.E., Doetsch H., Ming Y., Baselgia L., Waldner F. Chaos in magnetic garnet thin films // J. Appl. Phys. – 1988. – Vol.63, №8. - Pt2B. – P. 4157 – 4159.
9. Yamazaki H. et al. Observations of Deterministic Chaos of Parallel-Pumped Magnons in Ferromagnetic (CH3NH3)2CuCl4 // J. Phys. Soc. Jpn.– 1986.– Vol.55.– C. 4477.
10. Nakamura K. et al. Chaotic states of ferromagnets in strong parallel pumping fields // J. Phys.– 1982.–Vol. C15.– P. L143 (2).
11. Demidov V.E., Kovshikov N.G. Nekotorye osobennosti perekhoda k khaosu pri avtomodulyatsii poverkhnostnykh spinovykh voln //Pis'ma v ZhETF. -1997. - Tom 66, vyp. 4. – S. 243–246.
12. Kandaurova G.S. Khaos, poryadok i krasota v mire magnitnykh domenov. – Izd. Ural'skogo gosuniversiteta. - 1997, №5. – S.31–52.
13. Landau L.D. /Sb. trudov. - T. I. - M.:Nauka, 1969. –447 s.
14. Akhiezer A., Bar'yakhtar V., Peletminskiy S. Spinovyevolny. - M.: Nauka, 1967.- 368 s.
15. Sementsov D.I., Shutyy A.M. Nelineynaya regulyarnaya i stokhasticheskaya dinamika namagnichennosti v tonkoplenochnykh strukturakh //Uspekhi fizicheskikh nauk. –2007. - T. 177, № 8. - S. 831–857.
16. Rezende S.M., Azevedo A. Self-oscillations in spin-wave instabilities // Phys. Rev. B. – 1992. -Vol. 45. – P.10387.
17. Kraemer M., Scott M., Patton C. Self-oscillations in spin-wave instabilities // Phys. Rev.B. – 2004. - Vol.70. –P.054402.
18. Balbashov A.M., Chervonenkis A.Ya. Magnitnye materialy dlya mikroelektroniki. - M.: Energiya, 1979.- 217s.
19. Shutyy A. M., Sementsov D. I. //Kristallografiya. 2006. – T.51. – S.330.
20. Hagtwisk T.S., Pegessini E.R., Weiss M.T. Subsidiary Resonance in YIG // J .Appl.Phys. – 1961. – Vol.32. – P.223.
21. Shuster G. Determinirovannyy khaos. - M.: Mir, 1988.- 248 s.
22. Berzhe P., Pomo I., Vidal' K. Poryadok v khaose. - M.: Mir, 1991.- 368 s.
23. Akhromeeva S. i dr. Nestatsionarnye struktury i diffuzionnyy khaos. - M.: Nauka, 1992.- 540 s.
24. Randoshin V.V., Chervonenkis A.Ya. Prikladnaya magnitooptika. - M.: Energoatomizdat, 1990.- 320 s.
25. Vashkovskiy A.V., Stal'makhov V.S., Sharaevskiy Yu.P. Magnitostaticheskie volny v elektronike sverkhvysokikh chastot. - Saratov: Izv-vo Saratovskogo un-ta, 1993.
26. Milyaev M.A. i dr. / sb. Novye magnitnye materialy mikroelektroniki: Sbornik trudov KhVIII Mezhdunar. shkoly-seminara, 24 – 28 iyunya 2002 g., Moskva. - M.: MGU, 2002 – 102 s.
27. Shutyy A.M., Sementsov D.I. / sb. Novye magnitnye materialy mikroelektroniki: Sbornik trudov KhKh Mezhdunar. shkoly-seminara, 12 – 16 iyunya 2006 g., Moskva. - M.: Izd-vo Fiz. fak. MGU, 2006. - C.7.
28. Wegrowe J.-E. Magnetization reversal and two-level fluctuations by spin injection in a ferromagnetic metallic layer // Phys. Rev. – 2003.- Vol. B 68. – P. 214414.
29. Bebenin N.G., Ustinov V.V. Chastoty spinovykh voln v sverkhreshetke s bikvadratichnym obmenom v magnitnom pole // FMM. - 2000. - T. 89, № 3. - C.19–23.
30. Butrim V.I., Dubinko S.V., Mitsay Yu.N. Anizotropiya i fazovye sostoyaniya ferrit-granatovykh plenok s razorienti-rovannymi poverkhnostyami // Fizika tverdogo tela. – 2003. - T. 45, vyp.6. - S.1052-1055.
31. Shkar' V.F., Nikolaev E.I., Sayapin V.N., Linnik A.I., Denisenkov V.P., Grishin A.M., Khartsev S.I. Struktura i svoystva napylennykh plenok zhelezo-ittrievogo granata // Fizika tverdogo tela.- 2005. - T.47, vyp.6. - S.1071-1074.
32. Kirichenko V.G., Snurnikova A.I. Kompozitsionnaya i strukturnaya neodnorodnost' pripoverkhnostnykh sloev gadoliniy-gallievogogo granata posle mekhanicheskoy obrabotki, ionno-luchevogo travleniya // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2001. - №529. – Iss.3(15). - S.61-63.
33. Ivanovskiy G.F., Kozyreva N.A., Savel'ev V.P. i dr. Poluchenie tonkikh ferritovykh plenok metodom ionno-luchevogo raspyleniya // Elektronnaya promyshlennost'. - 1986. - Vyp.4(152). - S. 12-17.
34. Dmitrieva T.V., Zheludov I.S., Lyubutin I.S. i dr. Svoystva amorfnoy i kristallicheskoy faz zhelezoittrievogo gra-nata, poluchennogo metodom plazmennogo napyleniya // Poverkhnost', fiz., khimiya, mekh. - 1986. - №6. - C.146–149.
35. Sawatsky E., Kay E. Properties of epitaxial garnet film // J. Appl. Phys. – 1969. - Vol. 40, №3. - P.1460–1462.
36. Yurchenko S.E., Baldokhin Yu.V., Fedichkin G.M. Issledovanie struktury i sverkhtonkikh magnitnykh vzaimodeystviy v implantirovannykh ferrit – granatovykh plenkakh // Acta Physica Polonica. - 1985. - Vol. A69, №2. – P. 317–321.
37. Kirichenko V.G., Kovalenko O.V., Mashkarov Yu.G. Struktura nanometricheskikh plenok zhelezo-ittrievogo granata // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2009. - №868. – Iss.3(43). - S.75-824.
38. Kirichenko V.G., Kovalenko O.V., Formirovanie tonkikh plenok ferritov pri ionnoluchevom osazhdenii. The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2010.- №899.– Iss.2(46). - S.93-98.
39. Kirichenko V.G., Kovalenko O.V. Yaderno-fizicheskiy analiz ferrogranatov // Naukoviy visnik Uzhgorods'kogo univer-sitetu. Seriya Fizika. – 2011. – Vip.29.– C.102–106.

40. Dubinko S.V., Nedviga A.S., Vishnevskiy V.T., Shaposhnikov A.N., Yagupov V.S., Nesteruk A.G., Prokopov A.R. // Pis'ma v ZhTF. – 2005. - T.31. – Vyp.22. - S.68–73.
41. Schultes N., Schieder H., Litterst J., Kalvius G.M. Structural properties of sputter deposited iron-garnet from Mossbauer spectroscopy // Nucl. hstr. Meth. – 1982. - Vol.199, №1-2. –R. 343–346.
42. Shaposhnikov A.N., Berzhanskiy V.N., Prokopov A.R., Milyukova E.T., Karavaynikov A.V. Svoystva interfeysa monokristallicheskaya plenka vismut-soderzhashchego ferrita-granata – podlozhka GGG // Uchenye zapiski. Seriya «Fizika». – 2009. – T.22(61), № 1. - S. 127-141.
43. Shaposhnikov A.N., Berzhanskiy V.N., Prokopov A.R., Karavaynikov A.V., Milyukova E.T., Golub V.O. Kristallizatsiya plenok ferritov-granatov osazhdennykh reaktivnym ionno-luchevym raspyleniem // Uchenye zapiski. Seriya «Fiziko-matematicheskie nauki». – 2010. – T.23(62), № 1. - S. 146–157.
44. Kreisela A., Sauli F., Bartosch L., Kopietz P. Microscopic spin-wave theory for yttrium-iron garnet films // Eur. Phys. J. - 2009. – Vol.B71. - R. 59–68.
45. Kajiwara Y. et al. Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator // Nature. - 2010.- Vol.464. - P.262-266.

*УДК 537.5*

# РОЗРОБКА ТЕХНОЛОГІЇ ЄМНІСНОЇ ДЕІОНІЗАЦІЇ ВОДИ

**В.І. Голота, Л.М. Завада, Д.В. Кудін, С.В. Родіонов**
*Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»*
*Україна, м. Харків, 61108, вул. Академічна, 1*
kudin@kipt.kharkov.ua
Received 15 October 2012, accepted 15 November 2012

У статті розглядається можливість створення технологій деіонізації води на базі карбонових матеріалів з розвиненою поверхнею та використання карбонового матеріалу САУТ-1С, модифікованного тітаном, для виготовлення ячійок ємнісної деіонізації води. Продемонстрована висока сорбційна здатність розроблених ячійок, котра не залежить від струму заряджання ємності.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА***:* подвійний електричний шар, карбонові матеріали, ємнісна деіонізація.

## DEVELOPMENT OF TECHNOLOGY FOR CAPACITIVE DEIONIZATION WATER

**V.I. Golota, L.M. Zavada, D.V. Kudin, S.V. Rodionov**
*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"*
*Ukraine, Kharkov, 61108, str. Academicheskaya, 1*
The article describes the development of the capacitive deionization technology based on carbon materials with extended surface and peculiarities of the application of titanium-modified carbon material SAUT-1S in the manufacture of CDI cells. Experimental results presented in the article show that capacitive deionization cells being developed have high sorption capacity that does not depend on the charging current.
**KEY WORDS:** electrical double layer, carbon materials, capacitive deionization.

## РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИИ ЁМКОСТНОЙ ДЕИОНИЗАЦИИ ВОДЫ

**В.И. Голота, Л.М. Завада, Д.В. Кудин, С.В. Родионов**
*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»*
*Украина, г. Харьков, 61108, ул. Академическая,1*
В статье рассматривается возможность создания технологии деионизации воды на базе карбоновых материалов с развитой поверхностью и применение карбонового материала САУТ-1С, модифицированного титаном, для изготовления ячеек ёмкостной деионизации воды. Продемонстрирована высокая сорбционная способность разработанных ячеек, которая не зависит от тока зарядки ёмкости.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** двойной электрический слой, карбоновые материалы, ёмкостная деионизация.

Забезпечення населення та промисловості якісною прісною водою є актуальною проблемою у всьому світі, в той же час у багатьох місцях є практично необмежений доступ до води з підвищеним вмістом солі, але для її використання необхідно провести опріснення. З цією метою використовується декілька методів, головними серед яких є зворотний осмос, електродіаліз, іонно-обміні методи та дистиляція [1]. Слід зазначити, що існуючі методи опріснення є або енергоємними, як-то випарювання, або недосконалими, як-то технології осмосу (проблема мембран), електродіалізу та іонно-обмінні методи, що у підсумки призводить до високої собівартості води, яка виробляється за цими технологіями. Одним з шляхів вирішення цієї проблеми є розробка і впровадження нових методів опріснення води.

Недавній прогрес у розробці мезопористих матеріалів викликав зростання інтересу до найбільш перспективного методу опріснення води, яким є ємнісна деіонізація води [2]. Механізм ємнісної деіонізації води полягає у наступному: при прикладанні напруги до електродів, які знаходяться у воді з підвищеним вмістом солі, сольватовані іони починають рухатись з потоку води, що прокачується, до поверхні електродів і адсорбуються на поверхні, при цьому вони утворюють подвійний електричний шар безпосередньо поблизу поверхні. В цей час з установки витікає потік деіонізованої води. Потім полярність прикладеної до електродів напруги змінюється і сольватовані іони десорбуються в об'єм води, вода збагачується іонами та зливається з установки. На практиці, електрохімічні установки ємнісної деіонізації води працюють або у циклічному, або у двотактному режимі, і виробляють як деіонізовану воду, так і воду збагачену іонами. Співвідношення між потоками деіонізованої води і води, що збагачено іонами, залежить від заданого рівня деіонізації і конструктивного виконання установки. Довгий час цей напрямок досліджень стримувався відсутністю матеріалів з достатньо високою розвиненою внутрішньою поверхнею, але останнім часом розвиток технологій виробництва мезопористих карбонів дозволив створити матеріали з площею активної поверхні у 800-2000 $м^2/г$, що викликало відновлення уваги до методу ємнісної деіонізації води. Слід зазначити, що окрім високорозвиненої внутрішньої поверхні електродів, для реалізації ємнісній деіонізації води, потенціал подвійного електричного шару, що формується за рахунок адсорбції сольватованих іонів на поверхні електродів, не повинен перевищувати потенціал дисоціації молекул води 1,23 В, інакше почнеться розряджання

© Golota V.I., Zavada L.M., Kudin D.V., Rodionov S.V., 2012

сольватованих іонів на поверхні електродів, тобто електроліз.

Метою роботи є вивчення можливості використання модифікованого карбонового матеріалу марки САУТ-1С для технології ємнісної деіонізації води, зокрема проведення експериментальних досліджень сорбційних властивостей матеріалу електродів та оптимізація циклу заряджання/розряджання електродів у електрохімічній установці, що є актуальними завданнями при проектуванні і будівництві промислових систем ємнісної деіонізації води [3].

## ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА УСТАНОВКА

До складу експериментального стенду входили електрохімічна установка, що складається з набору плоских карбонових електродів, які розміщено у герметичній ємкості, циркуляційний насос, програмоване низьковольтне джерело живлення, прилади контролю параметрів води та прилади для вимірювання електродинамічних характеристик процесу заряджання-розряджання електрохімічної установки. Принципова схема експериментального стенду представлена на рис.1.

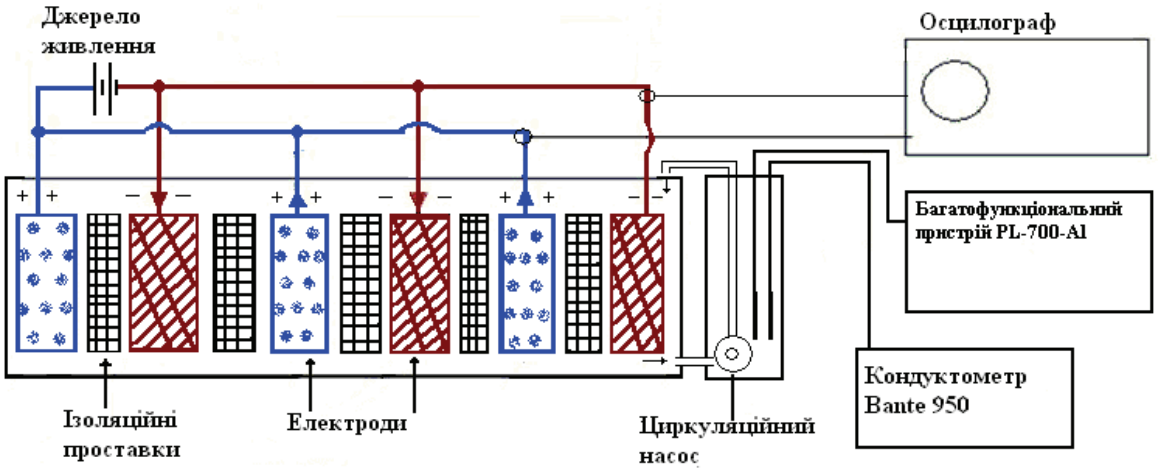



Рис.1. Схема експериментального стенду.

При виготовленні електродів для електрохімічної установки використовувався модифікований титаном мезопористий карбоновий матеріал САУТ-1С. Установка налічувала 20 плоских електродів з площею 900 см$^2$ кожен (площа активної поверхні карбонового матеріалу становила 684 см$^2$). Загальна робоча площа електродів становила 1,36 м$^2$. Живлення електрохімічної уставки здійснювалось від програмованого низьковольтного джерела живлення постійного струму CDS1-5M10, що складається з п’яти окремих модулів, кожен з яких має робочій діапазон напруги -1,5 В ÷ +1,5 В та робочій діапазон струму 0-10 А. Кожен модуль працює у режимі заряджання ємності до визначеної напруги у діапазоні 0-1,5 В, потім у режимі розряджання, далі у режимі заряджання при зміні полярності електродів, а потім знову у режимі розряджання. Тривалість кожного режиму задається окремо у діапазоні 1-60 хв. В експериментах напруга, до якої заряджалась електродна система електрохімічної установки, не перевищувала 1,1 В.

Модельний соляний розчин (з концентрацією NaCl 5000 ppm) готувався з дистильованої води та навіски хлориду натрію хімічної чистоти. Загальний об’єм розчину, що циркулював у системі, дорівнював 13,5 л. Швидкість циркуляції розчину становила 1 л/хв, тобто приблизно за 13,5 хвилин відбувалась повна зміна розчину.

Контроль електродинамічних характеристик здійснювався цифровим осцилографом Tektronix 2024B, який реєстрував сигнал з низьковольтного щупа, що був приєднаний до електродів, та з низьковольтного щупа, що був приєднаний до низькоомного шунта. Данні з осцилографу запам’ятовувались та оброблялись за допомогою PC. Контроль параметрів води здійснювався кондуктометром Bante 950 з температурною компенсацією та багатофункціональним пристроєм контролю якості води PL-700AL, данні з яких запам’ятовувались и оброблялись за допомогою PC. Вимірювання концентрації солі у розчину проводилось у буферному об’ємі. Похибка кондуктометра Bante 950 становить не більше 10 ppm.

## РЕЗУЛЬТАТИ ЕКСПЕРИМЕНТУ

Характерні осцилограми струму та напруги, а також динаміка зміни концентрації солі у розчину наведені на рис. 2. Затримка з початком зміни концентрації солі відносно початку заряджання-розряджання електрохімічної установки викликана низькою швидкістю циркуляції розчину. При збільшенні швидкості циркуляції розчину час затримки зменшується, при зменшенні - зростає.

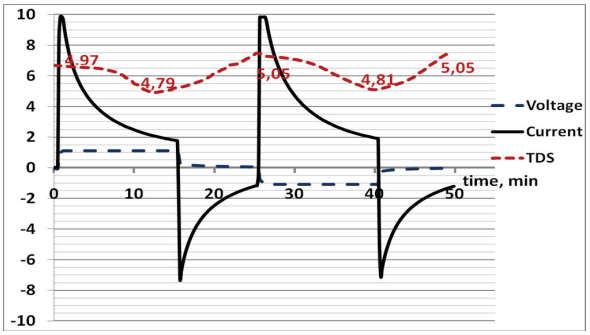



Рис.2. Характерні осцилограми заряджання-розряджання електродів та зміна концентрації солі в залежності від часу.

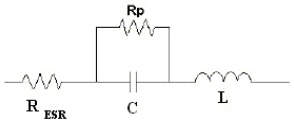



Рис.3. Еквівалентна електрична схема електрохімічної системи.

Встановлено, що в умовах експерименту, за 15 хвилин при напрузі заряджання 1,1 В концентрація солі у розчині зменшується в середньому на 200 ppm при температурі розчину 16,6°С, тобто з об'єму розчину на електродах адсорбується 2,7 г NaCl.

Враховуючи, що питома поверхнева щільність мезопористого карбону становить 130 г/м$^2$, а загальна маса карбонового матеріалу 176,8 г, можна оцінити питому сорбційну здатність модифікованого мезопористого карбонового матеріалу САУТ-1С, яка сягає 15,3 мг NaCl на 1 г карбонового матеріалу. Слід зазначити, що отримане значення питомої сорбційної здатності знаходиться на рівні найсучасніших світових досягнень, наприклад, у [4] отримано питому сорбційну здатність матеріалу на рівні 1,3 мг NaCl на 1 г карбонового матеріалу.

Експериментально було встановлено, що з часом сорбційна здатність карбонового матеріалу САУТ-1С зменшується, так через 2-3 тижні постійної работи собційна здатність падає на 30-35 % від початкового значення, а потім залишається на цьому рівні протягом довгого часу.

Для аналізу електродинамічних характеристики електрохімічних систем на базі мезопористих матеріалів зазвичай використовується еквівалентна схема, що наведена на рис. 3 [5], де $R_{ESR}$ – активна складова внутрішнього опору, що відповідає за процеси пов'язані з паразитними енерговитратами, такими як падіння напруги на контактах та енерговитрати на перенесення іонів крізь розчин до електродів, С – ємність, яка складається з послідовно з'єднаних ємностей двох конденсаторів (двох подвійних електричних шарів), що утворилися між шаром сольватованих іонів та поверхнею електродів, L – індуктивна складова, що пов'язана з рухом іонів та $R_p$ – відповідає за процеси розряджання іонів на поверхні електродів.

На рис. 4-7 наведено осцилограми циклів заряджання електрохімічної системи до 1,1 В при максимальних струмах заряджання 10; 7,5; 5 та 2.5 А.

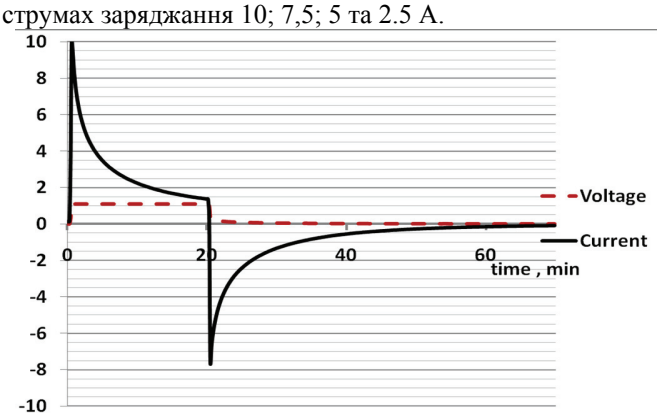



Рис.4. Осцилограма заряджання електрохімічної системи зі струмом заряджання 10 А.

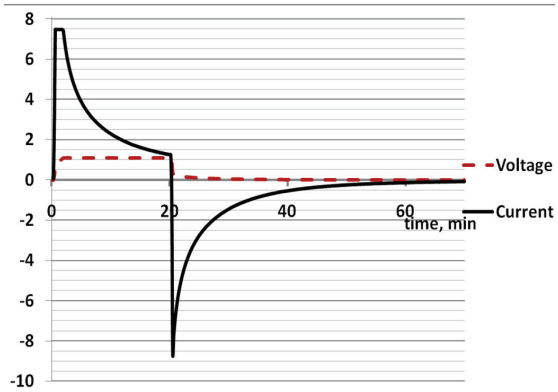



Рис.5. Осцилограма заряджання електрохімічної системи зі струмом заряджання 7,5 А.

З наведених осцилограм видно, що при зростанні струму I зростає падіння напруги на послідовному опорі. Аналіз осцилограм напруги показує, що відразу після прикладання напруги до електрохімічної системі відбувається швидке зростання потенціалу, а потім повільне заряджання електрохімічної системи, тобто спостерігається «сходинка» на осцилограмах напруги у момент вмикання/перемикання електрохімічної системи. Ця «сходинка» пов'язана з падінням напруги $U_{ESR}$ на внутрішньому опорі $R_{ESR}$, відповідно до формули:

$$U_{ESR} = I * R_{ESR}.$$

На рис.8 наведено залежність падіння напруги на активній складовій електрохімічного імпедансу $U_{ESR}$ від початкового постійного струму заряджання електрохімічної системи. Зростання падіння напруги на внутрішньому опорі при зростанні струму призводить до зростання енерговитрат на процеси, що не пов'язані з

утворенням подвійного шару та ємнісною деіонізацією води.

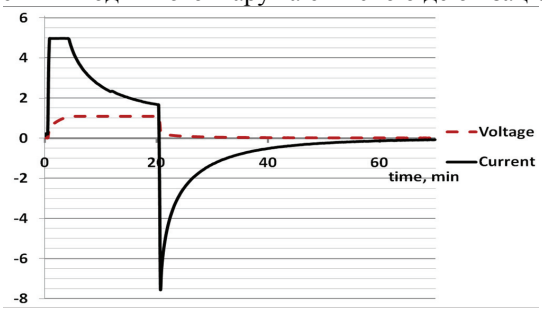



Рис.6. Осцилограма заряджання електрохімічної системи зі струмом заряджання 5 А.

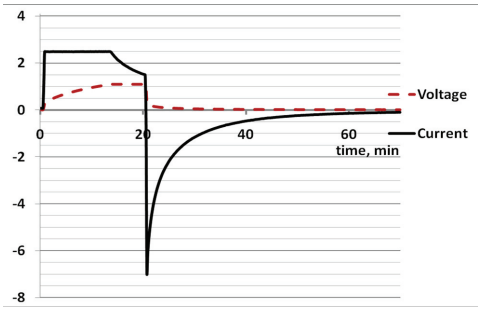



Рис.7. Осцилограма заряджання електрохімічної системи зі струмом заряджання 2,5 А.

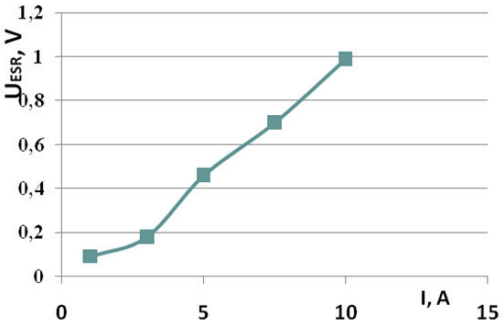



Рис.8. Залежність напруги на активній складовій електрохімічного імпедансу від струмів заряджання 1-10 А.

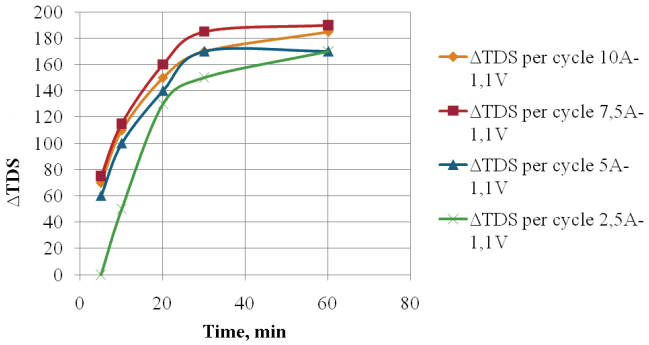



Рис.9. Залежність зміни концентрації солі у розчині від часу при різних струмах заряджання.

На рис.9 наведено залежність зміни концентрації солі, що вимірюється у буферній ємкості, від часу заряджання електрохімічної установки при різних початкових постійних струмах. Видно, що сорбційна здатність системи виходить на приблизно однаковий рівень не залежно від значення максимального струму, що протікав у електрохімічній системі. Тобто сорбційна здатність визначається ємністю електродної системи і майже не залежіть від струму заряджання.

## ВИСНОВКИ

Таким чином, показано перспективність використання модифікованого карбонового матеріалу САУТ-1С для технологій ємнісної деіонізації води.

Питома сорбційна здатність модифікованого карбонового матеріалу САУТ-1С становить 15,3 мг NaCl/ 1 г карбонового матеріалу при концентрації солі 5000 ppm.

З часом відбувається поступове зменшення сорбційної здатності матеріалу.

Падіння напруги на активній складовій електрохімічного імпедансу зростає при зростанні струму, що зумовлено зростанням енерговитрат на процеси не пов'язані з утворенням подвійного шару.

Сорбційна здатність системи визначається сумарною ємністю електродів і майже не залежіть від струму заряджання.

Робота виконана при підтримці проекту УНТЦ Р470.

## СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Welgemoed T.J. Capacitive deionization technology development and evolution of an industrial prototype system, Dissertation, Faculty of Engineering, the Built Environment and Information Technology, University of Pretoria etd. – 2005 – p.90.
2. Tsouris C., Mayes R., Kiggans J., Sharma K., Yiacoumi S., DePaoli D., Dai S. Mesoporous Carbon for Capacitive Deionization of Saline Water // Environ. Sci. Technol. – 2011. – Vol.45 (23). - P.10243–10249.
3. Porada S., Sales B.B., Hamelers H.V.M., Biesheuvel P.M. Water Desalination with Wires // J. Phys. Chem. Lett. - 2012. – Vol.3 (12). - P.1613–1618.
4. Haibo Li, Linda Zou, Likun Pan, Zhuo Sun Novel Graphene-Like Electrodes for Capacitive Deionization // Environ. Sci. Technol. – 2010. – Vol.44 (22). - P.8692–8697.
5. Diab Y., Venet P., Gualous H., Rojat G. Self-Discharge Characterization and Modeling of Electrochemical Capacitor Used for Power Electronics Applications // IEEE Transactions on power electronics. – 2009. - Vol. 24 (2). - P.510-517.

*УДК 537.534.9:621.793*

# ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ ИОННОГО ОСАЖДЕНИЯ В ИМПУЛЬСНОМ РЕЖИМЕ НА ХАРАКТЕРИСТИКИ АЛМАЗОПОДОБНОГО ПОКРЫТИЯ

**В.В. Васильев, А.И. Калиниченко, В.Е. Стрельницкий**
*Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт»*
*61108, Академическая,1, Харьков, Украина*
*E-mail: aikalinichenko@kipt.kharkov.ua*
Received 7 September 2012, accepted 14 November 2012

Теоретически исследуется осаждение алмазоподобного покрытия в импульсном режиме, в котором осаждаемый поток ионов плазменной среды с энергией $E_0$ ~ (20÷200) эВ модифицируется путем наложения импульсного потенциала $U \leq$ 1000 В. Показано, что внутренние напряжения в алмазоподобном покрытии (АПП) при импульсном режиме осаждения могут быть уменьшены в несколько раз без существенного уменьшения концентрации $sp^3$-связанного углерода, по сравнению с АПП, полученным в стационарном режиме осаждения при энергии ионов $E_0$. Предложен метод оптимизации параметров импульсного режима, основанный на анализе положения траекторий термоупругих пиков ионов на фазовой $P,T$-диаграмме углерода.
**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** алмазоподобное покрытие, плазменно-ионное осаждение, импульсный режим осаждения, внутреннее напряжение, фазовая $P,T$-диаграмма углерода, нелокальный термоупругий пик иона

## ВПЛИВ ПАРАМЕТРІВ ІОННОГО ОСАДЖЕННЯ В ІМПУЛЬСНОМУ РЕЖИМІ НА ХАРАКТЕРИСТИКИ АЛМАЗОПОДІБНОГО ПОКРИТТЯ

**В.В. Васильєв, О.І. Калініченко, В.Є. Стрельницький**
*Національний Науковий Центр „Харківський фізико-технічний інститут”*
*61108, Академічна, 1, м. Харків, Україна*
Теоретично досліджується осадження алмазоподібного покриття в імпульсному режимі, у якому осаджуваний потік іонів плазмового середовища з енергією $E_0$ ~ (20÷200) еВ модифікується шляхом накладання імпульсного потенціалу $U \leq$ 1000 В. Показано, що внутрішні напруження в алмазоподібному покритті (АПП) при імпульсному режимі осадження можуть бути зменшені в кілька разів без істотного зменшення концентрації $sp^3$-зв'язаного вуглецю, у порівнянні з АПП, отриманим в стаціонарному режимі осадження при енергії іонів $E_0$. Запропоновано метод оптимізації параметрів імпульсного режиму, заснований на аналізі положення траєкторій термопружних піків іонів на фазовій $P,T$-діаграмі вуглецю.
**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** алмазоподібне покриття, плазмово-іонне осадження, імпульсний режим осадження, внутрішнє напруження, фазова $P, T$-діаграма вуглецю, нелокальний термопружний пік іона.

## INFLUENCE OF PARAMETERS OF ION DEPOSITION IN PULSED MODE ON CHARACTERISTICS OF DIAMONDLIKE COATING

**V.V. Vasylyev, A.I. Kalinichenko, V.E. Strel’nitskij**
*National Science Centre “Kharkov Institute of Physics and Technology”*
*61108, Akademicheskaya, 1, Kharkov, Ukraine*
A pulsed mode of DLC coating deposition is theoretically investigated. In this mode a deposited ion flow of plasma environment with energy of $E_0$ ~ (20÷200) eV is modified by superimposing of pulsed potential $U \leq$ 1000 V. . It was shown that intrinsic stress in a DLC coating can be decreased in several times without of essential decrease of $sp^3$-bonded carbon concentration compared with DLC made in stationary mode deposition at $E_0$ ion energy. A method of optimization of pulsed mode parameters is proposed which is based on analysis of location of thermoelastic peaks of ions on phase $P,T$-diagram of carbon.
**KEY WORDS**: DLC coating, plasma-based ion deposition, pulsed mode deposition, intrinsic stress, phase $P,T$-diagram of carbon, non-local thermoelastic peak of ion

Образование тетраэдрического аморфного углерода (ta-C) при осаждении низкоэнергетических ионов $C^+$ непосредственно связано с подповерхностными явлениями, происходящими вблизи траектории иона [1]. В работах [2-4] различные аспекты образования ta-C при ионной имплантации связывались с тепловыми пиками ионов – малыми областями нанометровых размеров, в которых содержалась энергия имплантируемого иона. В частности, в [4] предложена модель образования ta-C при имплантации ионов $C^+$ с энергией $E$ от 25 до 1000 эВ в углеродную мишень, согласно которой ta-C образуется в результате кратковременного совместного действия высоких температуры и давления в нелокальном термоупругом пике (НТП), содержащем термализованные фононные потери энергии иона. При этом учитывалось, что давление в пике слагается из термоупругого давления, обусловленного нагревом вещества энергетическими потерями иона, деформационного давления, связанного с привнесением дополнительного объема, и внутренних напряжений в материале, возникающих в покрытии при ионной бомбардировке. Как показано экспериментально и теоретически [1,2,5], величина внутренних напряжений зависит от энергии осаждаемых ионов и температуры подложки и варьирует в пределах от ~10 ГПа до ~0,4 ГПа при изменении энергии ионов от 20 эВ до 1000 эВ. При осаждении

© Vasylyev V.V., Kalinichenko A.I., Strel’nitskij V.E., 2012

углеродных покрытий напряжения сжатия, с одной стороны, способствуют образованию плотной фазы осаждаемого материала, но с другой - могут приводить к отслоению покрытия от подложки [2]. В связи с этим весьма актуальна разработка методов осаждения, ограничивающих внутренние напряжения без существенного ухудшения физико-механических свойств покрытий. Одним из технологических приемов, приводящих к уменьшению внутренних напряжений, может служить осаждение покрытия, погруженного в плазму, в режиме импульсного потенциала смещения [6,7]. В этом случае стационарный процесс осаждения ионов с энергией $E_0 \sim (20 \div 200)$эВ , чередуется с импульсным облучением ионами гораздо большей энергии $E \sim 1000$ эВ.

Целью настоящей работы является изучение термодинамических условий формирования углеродного покрытия в режиме импульсного потенциала для определения влияния параметров ионного осаждения – длительности и частоты повторения импульсов, а также энергии ионов «высокоэнергетических» импульсов - на характеристики углеродного покрытия.

## МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

### Положение НТП ионов на фазовой *P,T*-диаграмме углерода

**Случай постоянной энергии ионов**

В работе [4] был проведен расчет радиусов *R(t,E)*, температур *T(t,E)* и давлений *p(t,E)* в НТП ионов $C^+$ в тетраэдрическом аморфном углероде (ta-C), в зависимости от энергии иона и времени $t$ с момента возникновения пика. Это позволило построить траектории пиков различных энергий на фазовой *P,T*- диаграмме углерода. Расположение P,T- траектории относительно границы ‘алмаз - графит’ принималось в качестве основного критерия возможности образования ta-C в НТП иона.

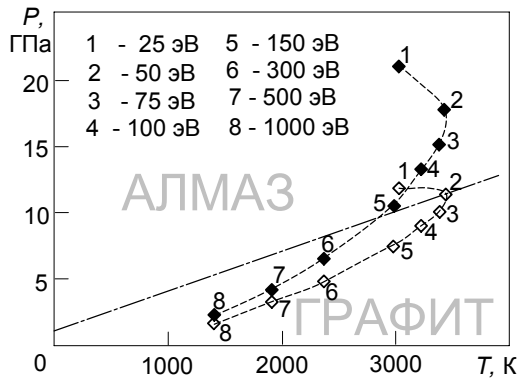



Рис. 1. Начальная локализация пиков ионов $C^+$ различных энергий в углеродной матрице на фазовой P,T-диаграмме углерода. Светлые символы ◇ соответствуют случаю ненапряженной мишени; символы ◆ указывают положение пиков с учетом внутренних напряжений, возникающих при осаждении ионов различных энергий в непрерывном режиме.

На рис. 1 показана начальная локализация НТП ионов $C^+$ различных энергий в ненапряженной углеродной матрице на фазовой P,T-диаграмме углерода (светлые символы ◇). Как видно из рисунка, только пики ионов с наименьшими энергиями ( $E \sim 25$ эВ ) лежат в области стабильности алмаза. Согласно принятому предположению, это означает, что только ионы с такими энергиями эффективно производят $sp^3$ – связанный углерод.

Как отмечалось во вводной части статьи, при осаждении ионов определенной энергии $E$ в покрытии образуются напряжения сжатия $\sigma$, величина которых зависит от $E$ [1,2]. С использованием модели НТП было получено выражение для внутренних напряжений, возникающих в осаждаемом покрытии при ионном облучении [5,8]:

$$\sigma(E) = B\frac{M}{\rho}\cdot\frac{E_Y}{1-\Pi}\cdot\frac{E^{1/2}}{(R/j)+w(E)}, \qquad (1)$$

где $R$ – плотность потока осаждаемых атомов, $j$ – плотность потока бомбардирующих ионов, $M$ – масса атома/иона, $E_Y$, $\Pi$ и $\rho$ - модуль Юнга, коэффициент Пуассона и массовая плотность материала покрытия, соответственно, $B$ – численная константа, близкая к единице. Число термоактивированных переходов $w(E)$ в НТП с энергией активации миграции $U \sim$ 0,1-0,4 эВ, в общем случае, зависит от температуры и определяется с учетом убыли дефектов за счет миграции :

$$w(E,T_0) = n_0\nu\int_0^{t_c} V(t,E)\, e^{-\frac{U}{k_B T(t,E,T_0)} - \nu\int_0^t e^{-\frac{U}{k_B T(\tau,E,T_0)}}d\tau}\, dt\,, \qquad (2)$$

где $n_0$ и $\nu$ – объемная концентрация и частота колебаний атомов мишени, $V(E,t)$ - объем пика, $t_c(E) = -R^2(E,0)/4\kappa$ – «время жизни» пика с начальным радиусом $R(E,0)$, $\kappa$ - коэффициент температуропроводности вещества мишени, $k_B$ – постоянная Больцмана. Выражения (1), (2) модифицируют известную формулу Дэвиса [2], учитывая нелокальность энергетических потерь иона, температуру подложки $T_0$, а также зависимость теплоемкости твердого тела от температуры. Температура *T(t,E)* в пике рассчитывается из уравнения [8,10]:

$$\frac{\eta(E)E}{\rho\, C\, V(E,t)} = TD\left(\frac{\theta}{T}\right) - T_0 D\left(\frac{\theta}{T_0}\right), \qquad (3)$$

где $C = 3\nu_a k_B / M$ – высокотемпературный предел теплоемкости, $\eta(E)$ - доля фононных потерь иона $C^+$ с

энергией $E$ в углеродном покрытии,

$$D(x)=\frac{3}{x^3}\int_0^x \frac{z^3\,dz}{e^z-1} \tag{4}$$

– функция Дебая. Объем пика задается формулой [8,10]:

$$V(E,t)=\pi\left[\frac{2}{3}R(E,t)^3+\frac{L(E)}{2}R(E,t)^2-\frac{1}{3}\frac{L(E)^3}{8}\right], \tag{5}$$

где $L(E)$ – длина пробега иона $C^+$ с с энергией $E$ в углеродном покрытии. Радиус пика $R(E,t)=L(E)/2+2\sqrt{\kappa(\tau+t)}$ изменяется со временем по закону теплопроводности, где $\tau$ - время ион-ионной релаксации. Функции $L(E)$ и $\eta(E)$ рассчитывались с помощью программного пакета SRIM2000 [9].

На рис. 2 приведена зависимость напряжений сжатия в осаждаемой пленке ta-C от энергии ионов $C^+$ при стационарном режиме осаждения, рассчитанная с помощью выражений (2) – (5) [5,8]. Температура подложки $T_0$ = 300 K.

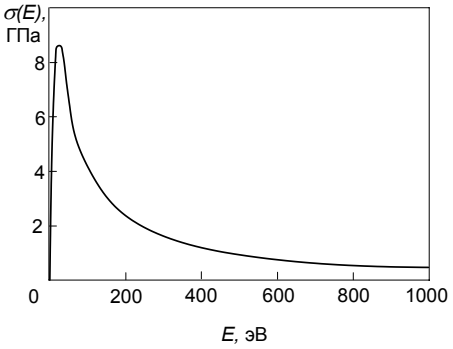



Рис. 2. Зависимость напряжений сжатия в пленке ta-C от энергии ионов $C^+$ при стационарном режиме осаждения.

С учетом этих напряжений, пики ионов $C^+$ занимают на фазовой диаграмме углерода положения, показанные символами ◆ на рис. 1. Из рисунка видно, что начальные локализации пиков сместились в сторону больших давлений, некоторые из пиков переместились в область стабильности алмаза. При этом интервал энергий ионов, производящих, в основном, $sp^3$- связанный углерод, значительно расширился (до ~250 эВ) [4].

**Импульсный режим осаждения**

В режиме импульсного потенциала пленку образуют ионы двух различных энергий. Известно, что ионы $C^+$ низких энергий $E_0 \le 100$ эВ в стационарном режиме осаждают пленку ta-C с наибольшей концентрацией $sp^3$ – связей [1,2]. Однако низкоэнергетические ионы создают и наибольшие внутренние напряжения в покрытиях $\sigma_0=(8\div10)$ ГПа. Назначение высокоэнергетических импульсов – уменьшать внутренние напряжения в покрытии. Как известно, осаждение постоянного потока ионов с энергией $E_2$ ~ 1000 эВ приводит к возникновению значительно меньших внутренних напряжений $\sigma \le 1$ ГПа [1,2]. Однако при этом формируется, в основном, $sp^2$- связанный углерод. Это связано с тем, что в нелокальных термоупругих пиках (НТП) ионов с такой энергией реализуются термодинамические условия, благоприятные для образования $sp^2$- связанного углерода [4].

Рассмотрим влияние параметров импульсного режима на характеристики осаждаемого покрытия. Зависимость энергии падающих ионов от времени схематически представлена на рис. 3. Длительность высокоэнергетического импульса, как правило, составляет $t_p$ ~ (5 – 10) мкс. Длительность низкоэнергетического импульса $t_0$ варьирует в широких пределах, в зависимости от частоты следования высокоэнергетических импульсов $0<f\le 1/t_p$: Плотность потока падающих ионов, определяемая скоростью продукции ионов, $j \sim 10^5$ мА/м$^2$ = $6\cdot10^{20}$ м$^{-2}\cdot$с$^{-1}$, принимается постоянной. В соответствии с распространенной экспериментальной методикой, будем полагать, что энергия ионов «низкоэнергетической» составляющей $E_0=eV_f$ определяется плавающим потенциалом $V_f=(k_BT_e/e)\ln\sqrt{M/m_e}\approx 18$ В, либо несколько превосходит эту величину. Здесь $T_e$ – температура электронов, $m_e$ – масса электрона. Энергия ионов «высокоэнергетических» импульсов в настоящей работе ограничивается сверху максимальной энергией применимости модели НТП $E \le 1$ КэВ. Такой режим создается подачей на подложку импульсного потенциала соответствующей амплитуды.

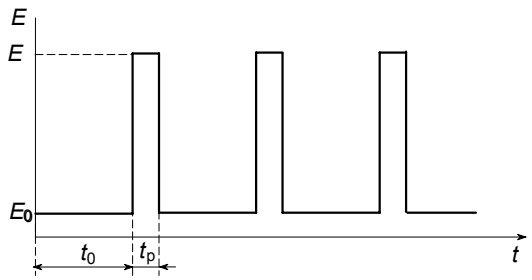



Рис. 3. Временная зависимость энергии падающих ионов.

В импульсном режиме, когда осаждаются ионы двух различных энергий, в покрытии устанавливаются внутренние напряжения сжатия $\sigma_p(f,E)$, определяемые суммарным вкладом ионов:

$$\sigma_p(f,E)=ft_p\,\sigma(E)+(1-ft_p)\sigma(E_0), \tag{6}$$

Выражение (6), полученное в приближении бипластины с относительными толщинами слоев $ft_p$ и $1-ft_p$, справедливо при выполнении нескольких условий: 1) применимости модели НТП; 2) стационарности процесса установления напряжений за время импульса; 3) независимости энергии активации миграции дефектов от внутреннего давления. Выполнение этих условий позволяет использовать энергетическую зависимость (1) для внутренних напряжений $\sigma(E)$, показанную на рис. 2 [5,8].

Очевидно, что величина возникающих в импульсном режиме напряжений лежит в интервале $\sigma(E) < \sigma_p < \sigma_0$. На рис. 4 приведена зависимость внутренних напряжений $\sigma$ в углеродном покрытии, осаждаемом в импульсном режиме, от частоты следования импульсов *f*. Приведены расчетные данные для трех различных энергий ионов в «высокоэнергетическом» импульсе при $E_0$ = 25 ‘эВ.

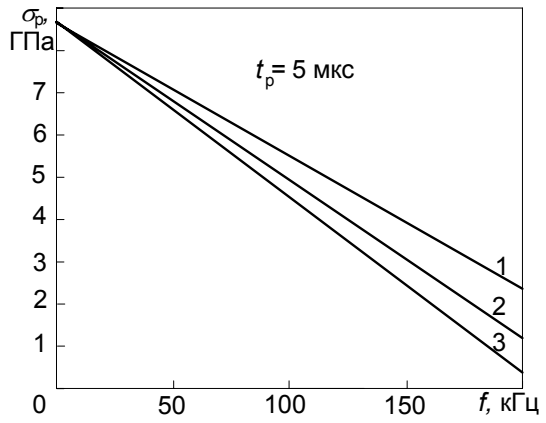



Рис. 4. Зависимость внутренних напряжений $\sigma_p$ от частоты следования импульсов *f*. Энергия ионов в импульсе *E* = 200, 400 и 1000 эВ (кривые 1, 2, 3, соответственно).

Полагая $E_0 = 25$ эВ, $E = 1000$ эВ, получаем, что внутреннее напряжение $\sigma_p$ может изменяться, в зависимости от частоты повторения импульсов *f*, в довольно широком диапазоне значений $0{,}46\ \text{ГПа} < \sigma_p < 8{,}6\ \text{ГПа}$. Однако, при любой частоте *f* из разрешенного диапазона $0 \le f \le 1/t_p$ возникающие внутренние напряжения приводят к подъему пика высокоэнергетичного иона и опусканию пика низкоэнергетичного иона на фазовой *P,T*- диаграмме углерода. Так, на рис. 5 показано положение пиков ионов с энергиями 25 эВ и 1000 эВ в ненапряженной матрице (◇), в напряженной матрице при осаждении ионов указанных энергий в стационарном режиме (◆) и при осаждении в импульсном режиме (▲). Характеристики импульсного режима выбраны следующими: $t_p$ = 5 мкс; $E_0$ = 25 эВ; *f* = 24 кГц; *E* = 1000 эВ.

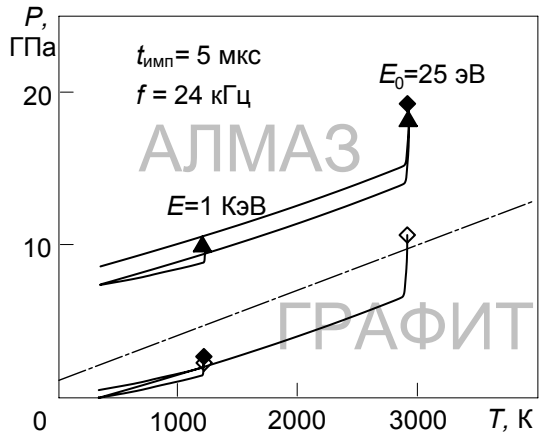



Рис. 5. Траектории пиков ионов $C^+$ с энергиями 25 эВ и 1000 эВ в углеродной матрице на фазовой *P,T*-диаграмме углерода в случаях: ненапряженной мишени (◇); с учетом напряжений в стационарном режиме осаждении (◆); с учетом напряжений в импульсном режиме осаждения (▲).

Из рисунка видно, что, если положение пика низкоэнергетического иона в импульсном режиме изменилось незначительно (пик слегка опустился в область меньших давлений, не выходя за пределы области стабильности алмаза), то высокоэнергетический пик, напротив, существенно поднялся в область более высоких давлений, перейдя при этом из области стабильности графита в область стабильности алмаза. Вследствие этого, осаждаемые ионы высокоэнергетической фракции должны продуцировать $sp^3$- связанный АПП углерод, как и низкоэнергетические ионы. В этом случае применение импульсного режима осаждения ионов $C^+$ незначительно уменьшает эффективность образования $sp^3$- связанного углеродного покрытия, по сравнению с осаждением ионов постоянной энергии.

### Выбор оптимальных параметров импульсного режима осаждения

С увеличением частоты повторения высокоэнергетических импульсов *f* напряжения в осаждаемом покрытии уменьшаются (см. рис. 4). Это позволяет снижать величину остаточных напряжений в покрытии без существенного снижения эффективности образования $sp^3$-связанного углерода при условии, что начальные положения пиков ионов и их траектории на фазовой *P,T* - диаграмме не выходят за границы области стабильности алмаза. Предельный случай, соответствующий минимальным остаточным напряжениям достигается при частоте повторения импульсов $f_m = 132$ кГц (см. рис. 6). $\sigma_{p\min} \equiv \sigma_p(f_m, 1000\ \text{эВ}) = 3{,}2\ \text{ГПа}$.

При дальнейшем увеличении частоты повторения «высокоэнергетических» импульсов тепловой пик иона на фазовой диаграмме смещается вниз настолько, что часть траектории лежит в области стабильности графита. При этом внутренние напряжения в покрытии еще больше падают, однако уменьшается и эффективность

образования $sp^3$- связанного углерода, что отражается на снижении твердости и модуля упругости покрытия.

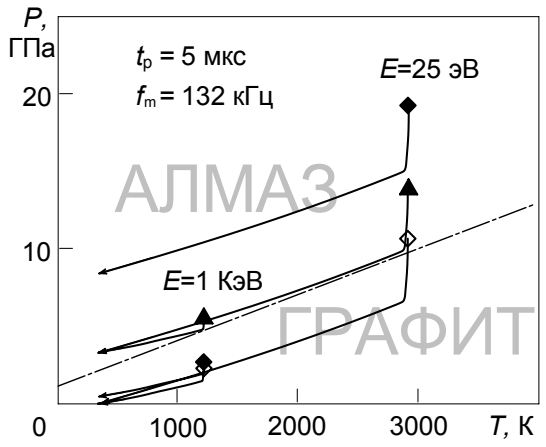



Рис. 6. Начальные положения и *P,T*-траектории пиков ионов $C^+$ с энергиями 25 эВ и 1000 эВ, в углеродной матрице на фазовой *P,T*-диаграмме углерода в случаях: ненапряженной мишени (◇); в стационарном режиме осаждении (◆); в импульсном режиме осаждения с частотой повторения импульсов $f_p$= 132 кГц (▲).

Использование импульсного режима осаждения АПП позволяет снизить остаточные напряжения в покрытии более чем в ~2,5 раза, по сравнению с осаждением ионов с энергией $E_0$ = (20÷40) эВ в стационарном режиме, когда возникают остаточные напряжения $\sigma \approx (8 \div 9)$ ГПа. При этом эффективность образования $sp^3$ связанного углерода существенно не изменяется.

## ВЫВОДЫ

1. Использование импульсного режима осаждения алмазоподобного покрытия позволяет значительно (в несколько раз) снизить остаточные напряжения в покрытии при сохранении эффективности образования $sp^3$ связанного углерода, по сравнению с осаждением ионов с энергией $E_0$ = (20÷200) эВ в стационарном режиме.

2. Изучение положения траекторий пиков ионов на фазовой *P,T*-диаграмме углерода позволяет выбрать оптимальные характеристики импульсного режима осаждения, при которых образование $sp^3$-связанного углерода происходит в нелокальных термоупругих пиках как низкоэнергетических, так и «высокоэнергетических» ионов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Robertson J. Diamond-like amorphous carbon // Materials Science and Engineering. – 2002.– Vol.R37. – P. 129-281.
2. Davis C.A. A simple model for the formation of compressive stress in thin films by ion bombardment // Thin Solid Films. – 1993. – Vol.226. – P. 30-34.
3. Robertson J. Deposition mechanisms for promoting $sp^3$ bonding in diamondlike carbon // Diamond and Related Materials. – 1993. – Vol.2 – P. 984-989.
4. Kalinichenko A.I., Strel'nitskiy V.E. Rol' termouprugikh napryazheniy v formirovanii almazopodobnogo pokrytiya pri obluchenii amorfnogo ugleroda nizkoenergeticheskimi ionami C+ // Fizika i khimiya obrabotki materialov. – 2003. - №2. - S.5-10.
5. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskij V.E. Dependence of intrinsic stress and structure of ta-C film on ion energy and substrate temperature in model of the non-local thermoelastic peak // Diamond & Related Materials. – 2010. – Vol.19. - P. 996-998.
6. Sheeja D., Tay B.K., Yu L.J., Lau S.P., Sze J.Y., Cheong C.K. Effect of frequency and pulse width on the properties of ta:C films prepared by FCVA together with substrate pulse biasing // Thin Solid Films. - 2002. – Vol.420 –421. – P. 62–69.
7. Zhang Y.B., Lau S.P., Sheeja D., Tay B.K. Study of mechanical properties and stress of tetrahedral amorphous carbon films prepared by pulse biasing // Surface & Coatings Technology. - 2005. – Vol.195. – P. 338– 343.
8. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskiy V.E. Formirovanie napryazheniy szhatiya v tonkikh plenkakh pri ionnom obluchenii // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya: «Fizika radiatsionnykh povrezhdeniy i radiatsionnoe materialovedenie». – 2007. - № 6 - S.116-119.
9. Ziegler J.F., Biersack J.P., Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids. - New York: Pergamon Press, 1996. - 297 p.
10. Kalinichenko A.I., Perepelkin S.S., Strel'nitskij V.E. Thermodynamic conditions of ta-C formation at implantation of noble-gas ions in carbon // Diamond and Related Materials. – 2006. – Vol.15, № 2-3. - P.365-370.

PACS 25.75.-q

# РОЖДЕНИЕ ЗАРЯЖЕННЫХ ПИОНОВ В СТОЛКНОВЕНИЯХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ ПРИ ЭНЕРГИИ УСКОРИТЕЛЯ SPS

**В.С. Трубников**
*ННЦ Харьковский физико-технический институт НАН Украины*
*ул. Академическая 1, 61108 Харьков, Украина*
*e-mail: vstrubnikov@yahoo.com*
Received 1 November 2012, accepted 16 November 2012

В данной статье представлены экспериментальные результаты по инклюзивному рождению заряженных пионов в периферических столкновениях ионов свинца $^{208}$Pb при энергии взаимодействия $\sqrt{S}$ = 17,3 ГэВ. Инвариантные сечения представлены в зависимости от поперечного импульса пионов и фейнмановской переменной $x_F$. Полученные экспериментально 288 значений плотно заполняют область фазового пространства в интервале поперечных импульсов $0 < p_T < 2$ ГэВ и фейнмановской переменной $0 \le x_F \le 0{,}4$.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА**: физика высоких энергий, столкновения тяжелых ионов, инклюзивное рождение частиц

## CHARGED PIONS PRODUCTION IN HEAVY-ION COLLISIONS AT SPS ENERGY

**V.S. Trubnikov**
*NSC Kharkov Institute of Physics and Technology NAS Ukraine*
*Akademicheskaya 1 st. 61108 Kharkov, Ukraine*

We present experimental results on inclusive charged pions production in peripheral collisions of $^{208}$Pb ions at top SPS energy $\sqrt{S}$ = 17.3 GeV. Invariant cross sections are presented as functions of $p_T$ and $x_F$. Experimentally obtained 288 values fill the phase space restricted to $0 < p_T < 2$ GeV and $0 \le x_F \le 0.4$.

**KEY WORDS:** high-energy physics, heavy ion collisions, inclusive particle production

## УТВОРЕННЯ ЗАРЯДЖЕНИХ ПІОНІВ У ЗІТКНЕННЯХ ВАЖКИХ ІОНІВ ПРИ ЕНЕРГІЯХ ПРИСКОРЮВАЧА SPS

**В.С. Трубніков**
*ННЦ Харківський фізико-технічний інститут НАН України*
*вул. Академічна 1, 61108 Харків, Україна*

У статті представлені експериментальні результати з інклюзивного народження заряджених піонів в периферійних зіткненнях іонів свинцю $^{208}$Pb при енергії взаємодії $\sqrt{S}$ = 17,3 ГеВ. Інваріантні перерізи реакції представлені в залежності від поперечного імпульсу $p_T$ і фейнманівської змінної $x_F$. Отримані експериментально 288 значень щільно заповнюють область фазового простору в інтервалі поперечних імпульсів $0 < p_T < 2$ ГеВ і фейнманівської змінної $0 \le x_F \le 0{,}4$.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** фізика великих енергій, зіткнення важких іонів, інклюзивне утворення частинок

В отсутствии строгих теоретических моделей, экспериментальные данные по рождению адронов в кинематической области непертурбативной квантовой хромодинамики (КХД) представляют большой интерес. Несмотря на то, что с запуском Большого Адронного Коллайдера (БАК), в физике взаимодействий тяжелых ионов стали доступны очень большие энергии столкновения, эксперименты при относительно низких энергиях, порядка $\sqrt{S} \sim 20$ ГэВ, остаются одним из центральных направлений исследований (в данной работе исследуются взаимодействия ионов при энергии $\sqrt{S}$=17,3 ГэВ, имея в виду энергию на пару сталкивающихся нуклонов в системе центра масс). Существенные экспериментальные усилия предприняты в предыдущие десятилетия в этом направлении. Исследования, проводимые в экспериментах ISR (ЦЕРН, Швейцария) и лаборатории Fermilab (Чикаго, США), были продолжены на ускорителе SPS (ЦЕРН, Швейцария). В последнее время программа "сканирование при низких энергиях" (Low Energy Scan Program), проводимая на ускорителе RHIC (США), предоставляет огромный массив новых экспериментальных данных для исследования. БАК, который в настоящее время является самой крупной экспериментальной установкой для изучения физики высоких энергий, пока ещё не вышел на максимальные значения светимости и энергии, но уже расширил границы нашего понимания Стандартной модели в физике частиц. Можно надеяться, что будущая работа БАК ещё больше углубит наши знания в этой области.

Сравнение рождения адронов (так называемые «soft hadronic interactions») в столкновениях различных систем, протон-протон (p+p), протон-ядро (p+A), ядро-ядро (A+A), позволяет исследовать ряд интересных эффектов, таких как усиление рождения странных частиц, подавление рождения частиц с большим поперечным импульсом и некоторых других (см., например, [1,2]). Изучение рождения заряженных адронов в столкновениях ионов в зависимости от центральности столкновений является ещё одним источником важной информации.

Одной из основных целей данной работы является исследование образования заряженных пионов в столкновениях ионов свинца на ускорителе SPS при помощи детектора NA49. В частности, работа содержит

© Trubnikov V.S., 2012

полученные нами экспериментальные данные по инвариантным сечениям образования заряженных пионов в периферических столкновениях ионов свинца $^{208}$Pb при энергии столкновений в системе центра масс √S=17,3 ГэВ, которая является максимальной энергией ускорителя SPS. Автор статьи непосредственно участвовал в наборе этих экспериментальных данных на ускорителе SPS при помощи детектора коллаборации NA49. Так называемые "сырые" данные были преобразованы в массивы данных micro-dst при помощи процедуры реконструкции, оптимизированной для малой плотности треков в детекторах. Представляемые результаты получены автором в процессе обработки micro-dst специализированным программным обеспечением, используемым коллаборацией NA49. Кроме того, в данной работе учтены разнообразные поправки, которые детально обсуждаются ниже. Результирующие сечения представлены в зависимости от поперечного импульса пионов $p_T$ и фейнмановской переменной $x_F$. Полученные экспериментальные данные могут быть полезными для развития теоретических представлений о механизмах образования мезонов в столкновениях тяжелых ионов.

Целью данной работы является исследование образования заряженных пионов как функцию центральности столкновений ионов. Дальнейшие исследования при различных центральностях, вместе с данными образования заряженных пионов в столкновениях p+p позволят проследить эволюцию фактора ядерной модификации для данной энергии взаимодействия.

## РОЖДЕНИЕ ЗАРЯЖЕНЫХ ПИОНОВ

Большинство частиц, рождаемых в результате взаимодействия ионов при рассматриваемой нами энергии являются пи-мезонами. Детальное изучение процесса рождения пионов в зависимости от различных наблюдаемых величин и кинематических характеристик может дать много информации о динамике взаимодействия, и может помочь в выделении и изучении различных эффектов. В частности, сравнение сечений рождения адронов в периферических, полуцентральных и центральных столкновениях ионов представляет большой интерес с точки зрения нахождения флуктуаций как функций центральности.

Анализируемые в нашей работе данные представляют собой часть данных (minimum bias) столкновений ионов свинца $^{208}$Pb, набранных при помощи детектора NA49, при энергии √S = 17,3 ГэВ на ускорителе SPS. При этом отбирались события по множественности регистрируемых заряженных частиц M в пределах $150 \le M \le 300$. Подобная, сравнительно низкая (для столкновений тяжелых ионов) множественность, позволяет утверждать, что в этих пределах находятся события столкновений с большим прицельным параметром, то есть, периферические столкновения. Для нахождения основных параметров взаимодействия для рассматриваемой множественности нами были проведены вычисления с помощью модели Глаубера [3]. Результаты приведены в таблице.

Таблица.

Средние значения основных параметров столкновений ионов свинца, вычисленные для рассматриваемой энергии взаимодействия и множественности

| Множественность, M | Прицельный параметр, b | Количество нуклонов участников столкновения, $N_p$ | Количество бинарных взаимодействий $N_{binary}$ |
|---|---|---|---|
| 150 < M < 300 | <b> ≈ 10,4 Фм | $<N_p>$ ≈ 68 | $<N_{binary}>$ ≈ 74,4 |

Идентификация частиц производится статистическим методом, основанным на измерении экспериментально наблюдаемой величины — потери энергии на ионизацию вдоль трека заряженной частицы в среде. При движении в чувствительном объёме детекторов, так называемых камер временной проекции (КВП, детально они описаны в работе [4]), заряженные частицы, сталкиваясь с молекулами газа, теряют часть своей энергии на ионизацию. Эти потери могут быть экспериментально измерены. Данная информация, вместе с информацией об импульсе, определяемом по кривизне отклонения заряженной частицы в магнитном поле, используется для идентификации частиц с помощью теории Бете-Блоха [5]. Метод идентификации частиц подробно описан в [6].

Полученные результаты для инвариантных сечений образования положительно и отрицательно заряженных пионов представлены на рис. 1 и рис. 2 в зависимости от поперечного импульса $p_T = \sqrt{p_x^2 + p_y^2}$ (поперечная характеристика импульса пионов), и фейнмановской переменной $x_F = \frac{p_L}{\sqrt{S}/2} = \frac{p_L}{p_{L\_MAX}}$ (продольная характеристика импульса пионов), где $p_{L,\max} = \sqrt{S}/2$ - максимально возможное значение продольного импульса. На рисунках приведена только статистическая погрешность, которая в нашем случае, как правило, меньше размера точки на графике. Высокая точность результатов является следствием большой набранной статистики событий и точности методов обработки.

В процессе получения конечных результатов, нами были учтены следующие поправки: 1) поправка на поглощение частиц неактивными частями детектора, 2) поправка на слабые распады заряженных пионов, 3) учёт образования заряженных пионов в слабых распадах странных частиц. Рассмотрим эти поправки более подробно.

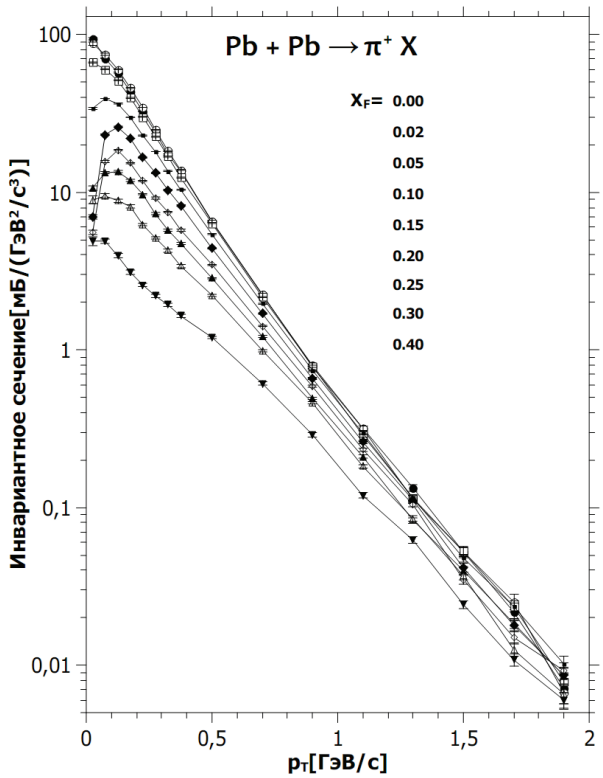



Рис. 1. Инвариантное сечение образования положительно заряженных пионов, как функция поперечного импульса, для различных значений $x_F$. Кривые сверху вниз соответствуют изменению $x_F$ от минимальных значений к максимальным.

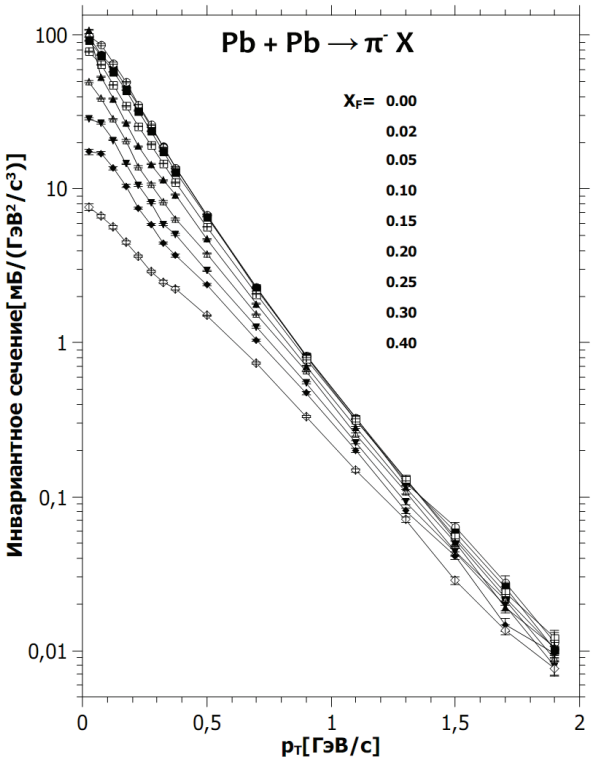



Рис. 2. Инвариантное сечение образования отрицательно заряженных пионов, как функция поперечного импульса, для различных значений $x_F$. Кривые сверху вниз соответствуют изменению $x_F$ от минимальных значений к максимальным.

Процесс поглощения рождённых частиц материалами детектора ведет к неизбежным потерям акцептации, т.е. к ухудшению способности детектора регистрировать частицы в доступной области фазового пространства. Детектор NA49 был изначально спроектирован для минимизации этих потерь. Вследствие успешной реализации этого требования, всего 2% общего числа рожденных пионов поглощаются материалами детектора и теряются. Максимальное поглощение осуществляется керамическими трубами, которые являются составными частями КВП. Величина поправки на поглощение определялась нами при помощи моделирования детектора программным обеспечением GEANT.

Слабые распады пионов являются ещё одним источником потерь при регистрации пионов, образованных в первичном взаимодействии. Заряженные пионы, в основном, распадаются на мюоны, $\pi^+ \to \mu^+ \nu_\mu$ и $\pi^- \to \mu^- \overline{\nu_\mu}$, в то время как распады $\pi^- \to e^+ \nu_e$ и $\pi^- \to e^- \overline{\nu_e}$, являются подавленными. Заряженные пионы имеют довольно большое время жизни, $2{,}6 \times 10^{-8}$ с, и, принимая во внимание размеры экспериментальной установки NA49 (13 метров), можно убедиться, что только незначительная часть образованных пионов распадется в детекторе. В соответствии с вычислениями, даже в предельном случае, когда рождённые пи-мезоны находятся в покое в СЦМ, всего 3,6% от их общего количества распадутся. Однако, в том случае, если пион перед распадом пролетает достаточно длинный путь в чувствительном объёме детектора, оставляя при этом более 30 ионизационных кластеров, он будет реконструирован в соответствии со стандартной процедурой. Таким образом, только пи-мезоны, распавшиеся вблизи мишени, будут утеряны и, в соответствии с моделированием Монте-Карло, величина этих потерь очень низка - всего 0,4% от общего числа рожденных пионов.

Рождение странных частиц ($K_S^0$, $\Lambda$, $\overline{\Lambda}$, $\Sigma^+$, $\Sigma^-$) и их последующий распад на заряженные пионы довольно существенно модифицирует количество регистрируемых пионов в конечном состоянии. Образованию странных частиц в соударениях тяжелых ионов при энергиях порядка $\sqrt{S}$ = 17,3 ГэВ уделялось много внимания (см., например, работу [7]). Для учёта влияния слабых распадов странных частиц на регистрацию заряженных пионов, нами было проведено детальное моделирование с использованием программного обеспечения GEANT, в котором были учтены особенности геометрии и акцептации детектора NA49.

Исходя из кинематики задачи, мы нашли, что заряженные пионы, которые образуются в результате слабых распадов странных частиц, а не в первичном взаимодействии кварков и глюонов, имеют достаточно малый импульс в СЦМ (а именно, $p_T$ порядка 100-200 МэВ, $x_F$ вблизи нуля) и, следовательно, мы ожидаем, что

наибольший вклад эта поправка вносит при малых значениях $p_T$ и $x_F$. В то же время, величина этой поправки значительна, она достигает 15% при малых импульсах, и уменьшается до 4-5% с ростом $p_T$ и $x_F$.

Как видно из конечных результатов, инвариантные сечения уменьшаются на четыре порядка с ростом $p_T$ до двух Гэв. Если обратить внимание на зависимость продольной характеристики $x_F$, видим, что значения сечений уменьшаются более чем на порядок при увеличении $x_F$ от $x_F$=0 до $x_F$ = 0,4.

Из сравнения рис. 1 и рис. 2 можно видеть, что в области малых поперечных импульсов наблюдается асимметрия между сечениями рождения положительно и отрицательно заряженных пионов, наиболее ярко выраженная при $x_F$=0,15. Предлагаемое нами объяснение подобной асимметрии заключается в наличии кулоновского взаимодействия в конечном состоянии между образованными заряженными пионами и локализованным положительным зарядом - фрагментом иона после периферического столкновения. Аргументом в пользу этого объяснения служит кинематика взаимодействия. В соответствии с расчетами, пионы, имеющие $x_F \approx 0{,}15$ и малый поперечный импульс, находятся практически в покое (имеют малую скорость) относительно спектаторов. Таким образом, образованные пионы испытывают влияние положительного кулоновского поля и пребывают в нём время, достаточно длительное для изменения своего импульса. Вследствие этого взаимодействия, положительно заряженные пионы выталкиваются из рассматриваемой области фазового пространства, а отрицательно заряженные - притягиваются, что и приводит к наблюдаемой асимметрии. Если наше предположение является верным, то стоит ожидать уменьшения зарядовой асимметрии с увеличением центральности столкновений (с уменьшением прицельного параметра).

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нами представлены экспериментальные результаты по инвариантным сечениям рождения заряженных пионов в периферических столкновениях (с прицельным параметром b ≈ 10,4 Фм) ионов свинца $^{208}$Pb при энергии взаимодействия √S = 17,3 ГэВ в СЦМ. Проанализированные данные были получены с использованием специализированной схемы реконструкции событий, оптимизированной для малых плотностей треков в детекторах КВП.

Предложено объяснение наблюдаемой асимметрии между положительными и отрицательными пионами, как следствие кулоновского взаимодействия в конечном состоянии между образованными заряженными пионами и положительно-заряженным остаточным фрагментом иона.

Продолжение исследований рождения заряженных пионов в полуцентральных и центральных столкновениях ионов, и сравнение результатов с полученными данными для периферических столкновений, поможет уточнению и развитию теоретических моделей и лучшему пониманию наблюдаемых эффектов.

Учитывая то, что процедуры реконструкции и обработки данных непрерывно совершенствуются, конечные результаты могут быть модифицированы в процессе дальнейших исследований, однако, по нашему мнению, возможные модификации будут незначительными.

Автор выражает благодарность коллегам за производство массивов micro-dst и помощь в вычислении поправок. Также автор хотел бы выразить свою признательность А.Ю. Корчину за плодотворное сотрудничество.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kliemant M., Raghunath Sahoo, Schuster T., Stock R. Global Properties of Nucleus-Nucleus Collisions // Lect. Notes Phys. – 2010. - Vol.785. – P.23-103; e-Print: arXiv:0809.2482 [nucl-ex].
2. Trubnikov V. Issledovaniya kvark-glyuonnoy plazmy pri nizkikh energiyakh // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2011. - №969– Iss.3(51). - S.89.
3. Miller M.L., Reygers K., Sanders S.J., Steiberg P. // Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. – 2007. Vol.57. – P.205-243.
4. Afanasiev S. et al. The NA49 large acceptance hadron detector // Nucl. Instr. and Meth. – 1999. – Vol.A430. – P.210.
5. Bethe H., Ashkins J. Passage of Radiation Through Matter”, in Experimental Nuclear Physics, E. Segre, ed (Wiley, New York, 1953), Vol. I, p.166].
6. Alt C. et. al. (the NA49 Collaboration) Inclusive production of charged pions in p+p collisions at 158 GeV/c beam momentum // Eur. Phys. J. – 2006. – Vol.C45. – P.343-381; arXiv:hep-ex/0510009v1
7. Presented by R.A. Fini et al. Strange baryon production in Pb–Pb collisions at 158 A GeV/c // J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. – 2001. – Vol.27. – P.375–381.

# ВЛАДИМИР ТАРАСОВИЧ ТОЛОК



**25.12.1925 – 11.12.2012**

11 декабря 2012 года ушел из жизни член-корреспондент НАН Украины, доктор физико-математических наук, заслуженный деятель науки и техники Украины, Почетный доктор ХНУ имени В.Н. Каразина, Почетный профессор ННЦ «ХФТИ» Владимир Тарасович Толок.

В. Т. Толок родился 25 декабря 1926 года в гор. Умань Черкасской области в семье военнослужащего. В школьные годы родители часто меняли место жительства, он вместе с родителями проживал в разных городах Украины – Николаеве, Павлограде, Никополе, Кривом Роге, Днепропетровске. В Павлограде Володя Толок пошел в первый класс, не догадываясь, что в этом городе родился и провел детские годы будущий его наставник и учитель акад. К.Д. Синельников. С июля 1941 года вместе с матерью находился в эвакуации в Оренбургской области. В августе 1943 года семья переехала в Дагестан, в г. Махачкала, где в то время отец работал начальником отдела инкассации республиканского банка.

В ноябре месяце 1943 года, оставив 10 класс средней школы, добровольцем В.Т. Толок отправился на воинскую службу. Был направлен в Объединенную школу младших авиаспециалистов ВВС Черноморского флота в гор. Новый Афон, которую закончил с отличием в 1944 году и получил специальность воздушного стрелка-радиста. Службу проходил в 13-м Краснознаменном Гвардейском Константцком авиационном полку 2-й Минно-торпедной дивизии ВВС ЧФ. Воевал в составе экипажа самолета-бомбардировщика. Участвовал в боевых действиях в районе Черного моря. После лечения в военно-морском госпитале Черноморского флота в Симферополе, куда он попал в результате аварии самолета, демобилизовался по болезни. Из госпиталя его выписали 9 мая 1945 года. В сентябре 1945 года вернулся к родителям в освобожденный Днепропетровск.

Сдав экзамены за 10-й класс экстерном, в 1946 году поступил на физико-математический факультет Днепропетровского госуниверситета. На четвертом курсе в числе группы студентов был переведен по рекомендации М.П. Жуковой на ядерное отделение физмата Харьковского госуниверситета. Дипломную работу выполнил в ХФТИ под руководством Я.М. Фогеля. После окончания университета в 1951 году был направлен на работу в Харьковский физико-технический институт.

Начинал свою научную деятельность В. Т. Толок в лаборатории ускорительной техники. Первой работой молодого специалиста была отладка линейного ускорителя протонов на энергию 5 МэВ. Однако, вскоре ему была поручена первая самостоятельная работа, связанная с сооружением и исследований возможностей 5-ти Мэвного линейного ускорителя электронов, заказчиком которого выступало КБ, которым руководил Ю.Б. Харитон. Особенностью нового ускорителя было получение в коротком импульсе $2\cdot10^{-7}$сек тока электронов, в десять раз превышающего известные в то время значения, а также повышенные требования к фокусировке пучка и ширине энергетического спектра. Используя опыт, накопленный при работе с протонными ускорителями, с этой задачей молодой ученый успешно справился – был получен ток электронов в 100 раз превышающий заданный. В 1957 году по материалам этой работы В.Т. Толок защитил кандидатскую диссертацию. Научным руководителем был акад. К.Д. Синельников.

В том же году В.Т. Толок был вынужден оставить так успешно начавшуюся работу с ускорительной техникой. Причиной тому стал категорический запрет медиков на работу с любыми видами ионизирующих излучений после облучения и длительного лечения в течение 1956–57 гг. в Московском институте биофизики. В результате, начиная с 1958 года по рекомендации К.Д. Синельникова Владимир Тарасович начинает заниматься новой тогда, «безрадиационной», областью физики – физикой плазмы и управляемых термоядерных реакций. Работы в этом новом направлении в институте только начинались, и он включается в исследования взаимодействия постоянных и переменных полей с плазмой и газами, занимается разработкой методов нагрева

плазмы, участвует в создании источников высокоэнергетичных потоков плазмы, изучением взаимодействия их с магнитными полями и между собой, в разработке методик и аппаратуры для бесконтактной диагностики плотной плазмы, внедрении систем автоматизированной обработки результатов измерений.

В 1960 году в творческой биографии Владимира Тарасовича начинается новый, может быть самый главный, период. По представлению акад. К.Д. Синельникова и по прямому заданию акад. И.В. Курчатова ему поручается руководство новой научной программой ХФТИ, связанной с разработкой основ управляемого термоядерного реактора. И.В. Курчатов предложил создавать реактор на базе ловушки с замкнутой магнитной системой стелларараторного типа. Закладываемые параметры стелларатора «Украина» и сегодня поражают воображение – диаметр сечения тороидальной камеры 1 метр, напряженность магнитного поля до 70 кгс. Во всем чувствовался масштаб личности акад. И.В. Курчатова. Внезапная кончина И.В. Курчатова в феврале 1960 года привела к тому, что первоначально задуманный проект трансформировался в конечном итоге в серию установок «Ураган» со значительно более скромными параметрами и сооружением первой из них только в 1967 году. К.Д. Синельников, стоявший у истоков этой программы, к сожалению, не дожил до этого события.

Начиная с 1966 года руководство всей стелларараторной программой ХФТИ было возложено на В.Т. Толока, как на одного из учеников акад. К.Д. Синельникова и представителя харьковской школы физиков-плазмистов. В результате многолетней деятельности в институте была создана единственная в Украине и одна из крупнейших в Европе мощная экспериментальная база для исследований в области управляемого термоядерного синтеза. Была сооружена серия стелларараторов, начиная с «Сириуса», «Урагана-1», потом «Ураган-2» и много позже «Ураган-2М». Этапным событием в развитии плазменного отделения ХФТИ явилось сооружение в 1970 году впервые в мире стелларатора-торсатрона «Сатурн» с принципиально новой магнитной системой, предложенной сотрудником института В.Ф. Алексиным. Позже был построен в то время самый большой и оригинальный торсатрон «Ураган-3» (1982 г.) и его модификация «Ураган-3М» – его магнитная система помещается в вакуумной камере. Сегодня в Японии работает построенный по этой схеме самый большой в мире стелларатор-торсатрон LHD, на котором получены результаты, поставившие его в один ряд с крупнейшими токамаками.

Создание установок типа «Ураган» требовало применения новых инженерных решений и разработки современных технологий. В начале 70-х годов по инициативе В.Т. Толока были начаты исследования в области неравновесной плазмохимии высоких энергий. Толчком к таким исследованиям послужил результат, «случайно» замеченный сотрудниками института при разработке высоковакуумных титановых насосов. В результате в ХФТИ была создана новая вакуумно-плазменная технология нанесения покрытий (способ КИБ – конденсация с ионной бомбардировкой), позволяющая в несколько раз повысить износостойкость режущего инструмента, увеличить надежность и долговечность узлов трения механизмов. Эта новая технология получила широкое распространение как у нас в стране, так и за рубежом (в 1982 году была продана первая в истории ХФТИ и Минсредмаша СССР лицензия на эту технологию американской фирме Multy arcs, имеющей филиалы в 47 странах мира).

В Харьковском госуниверситете В.Т. Толок начал работать в конце 1966 года, когда он по приглашению декана физико-технического факультета Г. А. Милютина возглавил созданную акад. К.Д. Синельниковым кафедру физики плазмы (заведовал кафедрой до начала 1971 года). С той поры связь с кафедрой и факультетом он поддерживал постоянно. В 1988 году В.Т. Толок при поддержке ректората организовал в университете специализированную вакуумно-плазменную лабораторию. Задачей лаборатории является разработка способов получения новых перспективных материалов в виде покрытий многофункционального назначения.

В последние годы Владимир Тарасович много внимания уделял популяризации достижений науки и техники, публикуя в различных изданиях, включая журнал Universitates, издаваемый Ассоциацией выпускников, преподавателей и друзей ХНУ имени В.Н. Каразина, статьи по истории физики. Апофеозом этой деятельности стала вышедшая в 2009 году книга «Физика и Харьков».

В.Т. Толок был награжден орденами Октябрьской Революции, Отечественной войны II ст., «Знак Почета», «За мужество» III ст. и многочисленными медалями. 2 ноября 2012 г. Владимиру Тарасовичу Толоку были вручены медаль и диплом Почетного доктора ХНУ имени В. Н. Каразина.

Память о Владимире Тарасовиче Толоке навсегда сохранится в сердцах его учеников и друзей, всех тех, кто работал с ним и имел счастье общаться с ним.

*И.Н. Адаменко, Н.А. Азаренков, В.С. Бакиров, Ю.А. Бережной, А.Н. Бизюков, В.В. Власов, И.Б. Денисенко, И.Е. Гаркуша, В.А. Гирка, И.А. Гирка, И.И. Залюбовский, В.Ф. Клепиков, Ю.А. Кирочкин, А.Н. Кондратенко, В.М. Куклин, В.С. Михайленко, В.И. Муратов, И.М. Неклюдов, Ю.В. Слюсаренко, В. И. Фареник, В.Д. Ходусов, Н.Ф. Шульга*

## ПРАВИЛА ДЛЯ АВТОРІВ

“Вісник Харківського національного університету” (серія: фізична «Ядра, частинки, поля») є збірником наукових робіт з фізики елементарних частинок, ядерної фізики, фізики плазми та плазмових технологій, фізики твердого тіла та радіаційної фізики. Журнал публікує наукові статті, короткі повідомлення, оглядові статті та рецензії на книги. До публікації у збірнику приймаються статті, які підготовлені у відповідності до правил для авторів і які отримали дві позитивні рецензії. Рукописи, які не відповідають правилам не розглядаються.

Для редагування тексту у MS Office Word можна застосовувати шаблон з готовими стилями, який розміщений на сайті журналу:

http://www-nuclear.univer.kharkov.ua.

**Об'єм статті, мова, супровідні документи.** До редакції подається рукопис об'ємом не менше 3-х сторінок українською, російською або англійською мовами в двох екземплярах з направленням закладу і актом експертизи, а також повний електронний варіант статті у форматі MS Office Word, а також ОКРЕМО електронні варіанти усіх рисунків у форматах "bmp", "tiff" або "jpg". Безпосередня вставка рисунків з інших програм не допускається. Якість рисунків повинна бути достатньою для відтворення тонких ліній, градацій відтінків та кольорів при чорно-білому друці. Редакція залишає за собою право вимагати поліпшення якості малюнків для отримання задовільної якості чорно-білого друку.

**Папір, формат, поля.** Текст друкується на білих листах формату А4 через один інтервал. Рекомендується використовувати редактор MS Word, шрифт Times New Roman (Cyr), редактор формул MathType версія 5.0 і вище. Поля справа, зліва і знизу по 2 см, зверху - 3 см.

**Нумерація сторінок.** Сторінки нумеруються послідовно на зворотному боці листа олівцем.

**Підписи авторів.** Один екземпляр рукопису повинен бути підписаним на зворотному боці листа усіма авторами.

## ПОСЛІДОВНІСТЬ РОЗМІЩЕННЯ МАТЕРІАЛУ

**Індекс класифікації.** На першій сторінці зверху пропускаються два рядка; у третьому рядку у лівому верхньому куті друкується УДК *(курсив*, 9 pt.) і/або PACS і значення індексу.

**Назва статті, список авторів статті.** Нижче індексу класифікації після пропуску одного рядка розміщується назва статті (прямий напівжирний шрифт, 12 pt., усі букви прописні, вирівнювання по центру). Нижче назви статті після пропуску одного рядка друкуються ініціали і прізвища авторів (прямий напівжирний шрифт, 12 pt., вирівнювання по центру).

**Назва і адреса організацій, що представляють автори.** Нижче списку авторів у наступному рядку друкуються повні назви і адреси організацій, які представляють автори (шрифт *курсив*, 9 pt., вирівнювання по центру), у наступному рядку - адреса електронної пошти для переписки. Якщо організацій декілька, то для вказівки відповідності авторів і організацій слід застосовувати виноски зірочкою або цифрами.

**Дата представлення статті в редакцію.** Нижче адреси електронної пошти друкується дата представлення статті в редакцію: число - цифрами, місяць - прописом, рік - цифрами (шрифт прямий, 9 pt., вирівнювання по центру).

**Реферати, ключові слова іншими мовами*.** Після пропуску одного рядка друкується реферат мовою статті об’ємом не менше ніж 500 знаків без відступів, з коротким викладом постановки задачі, методів, що були використані та основних результатів (шрифт прямий 9 pt., вирівнювання по ширині). Слово "реферат" не друкується. У наступному рядку після слів (мовою статті) **"КЛЮЧОВІ СЛОВА:"** (прописом, шрифт прямий напівжирний, 9 pt., без відступу) мовою статті розміщуються ключові слова (5-8 слів, шрифт прямий 9 pt., вирівнювання по ширині). Далі після пропуску одного рядка двома іншими мовами друкується назва статті (шрифт прямий напівжирний 9 pt., вирівнювання по центру), список авторів (шрифт прямий напівжирний 9 pt., вирівнювання по центру), список організацій, що представляють автори (шрифт курсив 9 pt., вирівнювання по центру), текст реферату та ключові слова.

**Основний текст статті, абзацний відступ.** Нижче реферату після пропуску одного рядка друкується основний текст статті (шрифт прямий 10 pt.). Абзацний відступ 0,75 см.

**Розбиття статті на розділи.** Рекомендується розбиття статті на такі розділи: вступ (назва цього розділу не друкується) **МАТЕРІАЛИ І МЕТОДИ** (обов'язково для експериментальних робіт), **РЕЗУЛЬТАТИ І ОБГОВОРЕННЯ, ВИСНОВКИ.**

Для теоретичних робіт допускається більш вільний розподіл матеріалу на розділи, наприклад, замість розділу **МАТЕРІАЛИ І МЕТОДИ** рекомендуються розділи **ПОСТАНОВКА ЗАВДАННЯ, МОДЕЛЬ** і тому подібне. Розділи не нумеруються, в назвах розділів усі букви прописні і виділяються напівжирним шрифтом, вирівнювання по центру. При необхідності розділи діляться на підрозділи. Назви підрозділів друкуються з великої літери і виділяються напівжирним шрифтом, вирівнювання по центру. Після кожного розділу чи підрозділу залишається один пустий рядок.

**Фонди, гранти.** Наприкінці тексту статті після пропуску одного рядка, якщо потрібно, вказується назва фонду, який фінансував роботу, і номер гранту.

**Формули, таблиці, малюнки, підписи, нумерація.** Математичні і хімічні символи, рівняння і формули друкуються в тексті статті за допомогою програми Math Type. Рисунки вставляються в текст статті у форматах: «bmp», «tiff» або «jpg». Всі надписи на рисунках і осях друкуються шрифтом не менше 8 pt. Підписи під рисунками друкуються шрифтом 9 pt. Формули, таблиці і рисунки послідовно нумеруються арабськими цифрами, наприклад: (1); Табл. 1; Рис. 1. Назва таблиць і рисунків є обов'язковими.

**Посилання і список літератури.** Використані у рукопису літературні джерела нумеруються в порядку цитування в тексті, номер посилання друкується в квадратних дужках. Список літератури (шрифт прямий 9 pt.) розміщується відразу за основним текстом статті і виділяється як розділ **СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ** (шрифт прямий напівжирний 9 pt.). Не допускаються посилання на неопубліковані роботи.

* For foreign authors is sufficient to provide abstracts in Russian and English.
Для зарубежных авторов достаточно рефератов на русском и английском.

Наукове видання

# Вісник Харківського національного університету

імені В.Н. Каразіна

# № 1025

*серія: фізична*

**“Ядра, частинки, поля”**

Збірник наукових праць

українською, російською, англійською мовами

Коректор - Коваленко Т.О.
Технічний редактор - Гірник С.А.
Комп’ютерне верстання - Гірник С.А.

Підписано до друку 3.12.2012. Формат 60x84 /8. Папір офсетний. Друк ризографічний.
Ум. друк. арк. 16,8. Обл.-вид. арк. 13,44.
Тираж 150 пр. Зам. № Ціна договірна

61022, Харків, майдан Свободи, 4
Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
Видавництво

Надруковано: Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
61022, Харків, майдан Свободи 4, тел. +380-057-705-24-32
Свідоцтво суб’єкта видавничої справи ДК № 3367 від 13.01.09

ISSN 2221-7754

**«Вісник Харківського національного університету** імені В.Н. Каразіна**», № 1025**
*серія: фізична* **«Ядра, частинки, поля»**, **2012,** вип. **4** /56/