

Volume 1 • Number 3 • 2014

ISSN 2312-4334

East European Journal of Physics



V.N. Karazin Kharkiv National University Publishing

ISSN 2312-4334

MINISTRY OF EDUCATION AND SCIENCE OF UKRAINE

East European Journal of Physics

Volume 1 · Number 3

2014

East European Journal of Physics

EEJP is an international peer-reviewed journal devoted to experimental and theoretical research on the nuclear physics, cosmic rays and particles, high-energy physics, solid state physics, plasma physics, physics of charged particle beams, plasma electronics, radiation materials science, physics of thin films, condensed matter physics, functional materials and coatings, medical physics and physical technologies in an interdisciplinary context.

Published quarterly in hard copy and online by Karazin Kharkiv National University Publishing.

ISSN 2312-4334 (Print), ISSN 2312-4539 (Online)

The editorial policy is to maintain the quality of published papers at the highest level by strict peer review.

Approved for publication by the Academic Council of the Karazin Kharkiv National University (October 31, 2014, protocol No.10)

Editor-in-Chief

Azarenkov N.A., Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine

Deputy editor

Girka I.O., Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine

Executive Secretary

Girnyk S.A., Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine

Editorial Board

Adamenko I.N., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Akulov V.P., City University of New York, USA

Antonov A.N., Institute of Nuclear Research and Nuclear Energy, Sofia, Bulgaria

Barannik E.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Beresnev V.M., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Berezhnoy Yu.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Bizyukov A.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Bragina L.L. STU Kharkiv Polytechnical Institute, Ukraine

Broda B., University of Lodz, Poland

Budagov Yu.A., Joint Institute of Nuclear Research, Dubna, Russia

Dobnyia A.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Dragovich B.G., University of Belgrade, Serbia

Duplij S.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Garkusha I.E., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Gofman Yu., Jerusalem College of Technology, Israel

Grekov D.L., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Karnaukhov I.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Khodusov V.D., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Kondratenko A.N., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Korchin A.Yu., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Krivoruchenko M.I., Institute for Theoretical and Experimental Physics, Moscow, Russia

Lavrinenko S.D., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Lazurik V.T., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Mel'nik V.N., Institute of Radio Astronomy, Kharkiv, Ukraine

Merenkov N.P., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Neklyudov I.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Noterdaeme J.-M., Max Planck Institute for Plasma Physics, Garching, Germany

Nurmagambetov A.Yu., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Onyschenko I.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Ostrikov K.N., Plasma Nanoscience Centre Australia, Clayton, Australia

Peletminsky S.V., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Pilipenko N.N., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Radinschi I., Gheorghe Asachi Technical University, Iasi, Romania

Slyusarenko Yu.V., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Smolyakov A.I., University of Saskatchewan, Saskatoon, Canada

Shul'ga N.F., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Tkachenko V.I., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Voyevodin V.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Yegorov O.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Editorial office

Department of Physics and Technologies

Karazin Kharkiv National University

Kurchatov av., 31, office 402, Kharkiv, 61108

Ukraine

Tel: +38-057-335-18-33

E-mail: eejp@univer.kharkov.ua

Web-pages: <http://eejp.univer.kharkov.ua>, <http://periodicals.karazin.ua/eejp> (Open Journal System)

Certificate of State registration No.20644-10464P, 21.02.2014

East European Journal of Physics

Volume 1

Number 3

2014

REVIEWS

- Hydrogen sulfide energy of the black sea** 4
N.A. Azarenkov, B.V. Borts, V.I. Tkachenko
- Physical aspects of vacuum-arc coating deposition** 22
I.I. Aksenov, D.S. Aksyonov

ORIGINAL PAPERS

- Nonequilibrium kinetics of electron-phonon subsystem of a crystal in strong electric and magnetic field as a base of electro- and magnetoplastic effects** 40
V.I. Karas, A.M. Vlasenko, V.N. Voyevodin, V.I. Sokolenko, V.E. Zakharov
- Correlation of secondary particles in the reaction of disintegration of $^4\text{He}(\gamma, pn)d$ on the beam of coherent bremsstrahlung radiation** 50
I.V. Dogjust
- Monte-Carlo evaluation of the radiation shielding efficiency of laminated composites under electron and photon irradiation** 55
B.V. Borts, M.I. Bratchenko, S.V. Dyuldy, I.G. Marchenko, D.A. Sanzharevsky, V.I. Tkachenko
- Monte-Carlo simulation of response of CdZnTe detectors of beta-radiation** 68
A.A. Zakharchenko, A.V. Rybka, L.N. Davydov, A.A. Vierovkin, V.E. Kutny, M.A. Khazhmuradov
- Determination of electron beam parameters on radiation-technological facility for simulation of radiation processing** 74
V.T. Lazurik, V.M. Lazurik, G. Popov, Z. Zimek
- Silicon monocrystals for alternative energy** 79
N.A. Azarenkov, V.E. Semenenko, A.I. Ovcharenko
- Intrinsic point defects in anisotropic crystalline systems (quasi-two NbSe₂ and quasi-one NbSe₃)** 85
A.A. Mamalui, T.N. Shelest, N.B. Fatyanova, K.A. Minakova, N.N. Galtsov
- Transformation ratio at plasma wakefield excitation by laser pulse with ramping of its intensity according to cosine** 90
V.I. Maslov, O.M. Svystun
- Definition of contribution and type of particles in mixed signal detectors** 95
V.N. Dubina
- On the vortex structure in two component bose-einstein condensate** 104
A.P. Ivashin, Yu.M. Poluektov
- “Paradox” of the void nucleation** 112
I.N. Laptev, O.O. Parkhomenko, V.I. Tkachenko

PACS: 88.30.E

HYDROGEN SULFIDE ENERGY OF THE BLACK SEA**N.A. Azarenkov^{1,2}, B.V. Borts¹, V.I. Tkachenko^{1,2}**¹ *National Science Center «Kharkov Institute of Physics and Technology»**1, Akademicheskaya St., Kharkov, 61108, Ukraine*² *V.N. Karazin Kharkiv National University**4, Svobody Sq., Kharkov, 61022, Ukraine**e-mail: tkachenko@kipt.kharkov.ua*

Received September 1, 2014

The word combination "hydrogen sulfide energy" was implemented after a series of publications dedicated to solving the problem of obtaining the energy from hydrogen sulfide of the Black Sea. This direction of research is a part of area of expertise which recently has been intensively developing – hydrogen sulfide energy. It is known that there is no hydrogen sulfide in the Black Sea in a thin surface layer with thickness 100 - 150 m, with a maximum depth of the basin about two kilometers. Starting from the depths of 100-150 m the concentration of hydrogen sulfide is increasing and reaches the value of ~ 10 mg/l at the bottom of the sea. Extraction of the hydrogen sulfide accumulated in waters of the Black Sea is a serious problem. Therefore, at present, a big number of technologies were offered to obtain hydrogen sulfide from waters of the Black Sea. All of them are resource and energy-consuming. The most preferable one, according to the stated parameters, is the hydrogen sulfide gas-lift technology of delivering water at a certain height above the sea level, its decontamination due to fast decompression, and subsequent discharge to a depth where the concentration of hydrogen sulfide corresponds to its concentration in the discharged water. Ecological risks appear when implementing such a technology, which may be leveled by conducting of special activities. Hence, implementation of gas-lift technology provides delivery of big volumes of deep sea waters at the level higher than the sea level, there is a possibility of additional obtaining of energy due to differences in temperatures, salinity of surface and deep waters, as well as hydrostatic power of water lifted at certain level above the sea level. If such energy generating facility can be constructed on the bases of floating platform, then there is a possibility to increase the generating capacity of the complex using energy of waves, wind and the sun. Thus, this paper provides the possibility of creating a floating power generating facility for extraction of different types of energies that are concentrated in the Black Sea.

KEYWORDS: hydrogen sulfide energy, Black Sea, gaslift technology, waves, wind, sun, floating power generating facility

СІРКОВОДНЕВА ЕНЕРГЕТИКА ЧОРНОГО МОРЯ**М.О. Азарєнков^{1,2}, Б.В. Борц¹, В.І. Ткаченко^{1,2}**¹ *Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»**61108 Україна, м. Харків, вул. Академічна, 1*² *Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна**61022, Україна, м. Харків, пл. Свободи 4*

Словосполучення "сірководень енергія" було запропоновано після серії публікацій, присвячених вирішенню проблеми отримання енергії з сірководню Чорного моря. Цей напрямок досліджень є частиною галузі знань, яка останнім часом інтенсивно розвивається - сірководнева енергетика. Відомо, що в Чорному морі в тонкому поверхневому шарі товщиною 100 - 150 м, при максимальній глибині басейну близько двох кілометрів, не міститься сірководень. Починаючи з глибини 100-150 м концентрація сірководню збільшується і досягає значення ~ 10 мг / л біля дна моря. Видобуток сірководню, накопиченого в водах Чорного моря, є серйозною проблемою. Тому до теперішнього часу було запропоновано велику кількість технологій для отримання сірководню з води Чорного моря. Всі вони ресурсо- і енергоємні. Найбільш кращим, відповідно до зазначених параметрів, є газліфтна технологія підйому морської води на певну технологічну висоту над рівнем моря, її дегазація внаслідок швидкого зниження тиску, і подальший злив на глибину, де концентрація сірководню відповідає його концентрації у воді, що зливається. Реалізація такої технології пов'язана з екологічними ризиками, які можуть бути вирішені шляхом проведення спеціальних заходів. Отже, реалізація газліфтного технології забезпечує доставку великих обсягів глибинних морських вод на рівень вище рівня моря, де виникає можливість додаткового отримання енергії за рахунок різниці температур, солоності поверхневих і глибинних морських вод, а також гідростатичної енергії води, піднятої на певну висоту над рівнем моря. Якщо такий енергогенеруючий комплекс буде побудований на основі плаваючої платформи, то виникає можливість збільшити його енергогенеруючу потужність в результаті використання енергії хвиль, вітру і сонця. Таким чином, в роботі пропонується створення плаваючого енергогенеруючого комплексу для видобування різних видів енергії, які зосереджені в Чорному морі.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: енергія сірководню, Чорне море, газліфтна технологія, хвилі, вітер, сонце, плаваючий енергогенеруючий комплекс

СЕРОВОДОРОДНАЯ ЭНЕРГЕТИКА ЧЕРНОГО МОРЯ**Н.А. Азаренков^{1,2}, Б.В. Борц¹, В.И. Ткаченко^{1,2}**¹ *Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»**61108, Украина, г. Харьков, ул. Академическая, 1*² *Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина**61022, Украина, г. Харьков, пл. Свободы 4*

Словосочетание "сероводород энергия" было предложено после серии публикаций, посвященных решению проблемы получения энергии из сероводорода Черного моря. Это направление исследований является частью области знаний, которое в

последнее время интенсивно развивается- сероводородная энергетика. Известно, что в Черном море в тонком поверхностном слое толщиной 100 - 150 м, при максимальной глубине бассейна около двух километров, не содержится сероводород. Начиная с глубины 100-150 м концентрация сероводорода увеличивается и достигает значения ~ 10 мг/л у дна моря. Добыча сероводорода, накопленного в водах Черного моря является серьезной проблемой. Поэтому до настоящего времени было предложено большое количество технологий для получения сероводорода из воды Черного моря. Все они ресурс- и энергоемкие. Наиболее предпочтительным, в соответствии с указанными параметрами, является газлифтная технология подъема морской воды на определенную технологическую высоту над уровнем моря, ее дегазация вследствие быстрого снижения давления, и последующий слив на глубину, где концентрация сероводорода соответствует его концентрации в сливаемой воде. Реализация такой технологии связана с экологическими рисками, которые могут быть решены путем проведения специальных мероприятий. Следовательно, реализация газлифтной технологии обеспечивает доставку больших объемов глубинных морских вод на уровень выше уровня моря, где возникает возможность дополнительного получения энергии за счет разности температур, солёности поверхностных и глубинных морских вод, а также гидростатической энергии воды, поднятой на определенную высоту над уровнем моря. Если такой энергогенерирующий комплекс будет построен на основе плавающей платформы, то возникает возможность увеличить его энергогенерирующие мощности в результате использования энергии волн, ветра и солнца. Таким образом, в работе предлагается создание плавающего энергогенерирующего комплекса для извлечения различных видов энергии, которые сосредоточены в Черном море.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: энергия сероводорода, Черное море, газлифтная технология, волны, ветер, солнце, плавающий энергогенерирующий комплекс

European Union (EU) has set a goal to increase the production of energy from the renewable energy sources (hereinafter. RES) up to 12% by 2010 with the approximate share of 6% in 2000. However, the corrected and a more pessimistic outlook based on the dynamics shown by the introduction of the RES introduction in the EU, shows the real value of the achievable share in the total energy balance of 8 – 10 % [1].

The share of energy production in Ukraine using RES is less than 1 % of all its fuel and energy resources [2]. The share of alternative power industry is planned to increase up to 10 % by 2010. Such prediction is based on the fact that the potential of natural resources for the development of alternative energy in Ukraine is not inferior to most countries in the European Union. This ratio is also confirmed by the study of RES potential carried out by the National Academy of Sciences which rates the possibility to use wind energy, solar energy, energy of small rivers, biomass energy, geothermal energy, the surrounding area energy, energy of the dumped energy and technological potential, unconventional fuel energy.

Necessity to develop the alternative power industry in Ukraine is also conditioned by extreme degradation of energy complex, considerable expenses on import of energy resources, availability of a well-developed industrial infrastructure for power plants, environmental issues associated with the fuel and energy complex.

Thus, the search for alternative environmentally friendly energy sources can now be attributed to the most relevant and promising for the power industry of Ukraine. According to one of the working hypotheses, actively discussed at present, hydrogen can be used to obtain such type of fuel because it is an environmentally friendly energy resource. Use of technology for hydrogen extraction from natural hydrogen sulfide of the Black Sea deep waters would be one of the possible methods to obtain hydrogen along with utilization of electricity overproduced by nuclear power plants (water electrolysis).

It should be noted that possible volumes of hydrogen sulfide energy use are not considered in the balance of RES sources in Ukraine, as well as related wave, wind, heat and related salinity gradient energies of the Black Sea region.

The following discussion will focus on the status, problems and prospects of energy utilization Black Sea hydrogen sulfide.

The aim of this work is discussion of the status, problems and prospects of energy utilization Black Sea hydrogen sulfide and other types of renewable, alternative energy sources of the Black Sea region.

STATUS, PROBLEMS AND PROSPECTS OF HYDROGEN SULFIDE POWER INDUSTRY OF THE BLACK SEA

Hydrogen sulfide resources of the Black Sea

Let's discuss the basic facts related to generally accepted points of view on formation, detection, reproduction and distribution of hydrogen sulfide in the Black Sea [3]. This information has a fundamental meaning. The fact is that until recently, there exists a point of view about the irrationality of extraction of hydrogen sulfide from the sea water due to unpredictable ecological consequences and low energy efficiency of the expected effect due to low concentration of hydrogen sulfide. In our article we will try to present our vision of the possibility to use hydrogen sulfide resources of the Black Sea based on up-to-date technological developments concerning its extraction and its ecologically safe disposal.

Chronological background. Dense Mediterranean waters reached the Bosphorus about 9 000 years ago due to global warming and sea level rise, and that was the start of their entry into the freshwater Black Sea Basin. This led to a stable salinity of lower layers of water, displacement and rise of deep and new-euxine waters, rich in nutrients, into euphotic area; significant increase of biological capacity of the basin which was followed by concentration of organic matter in water and sediments. Simultaneous development of density stratification limited sharply the flow of oxygen into

deep waters where it was consumed intensively by oxidation of a large number of deposited organic matters. As a result of these processes, a constant area with anaerobic conditions was formed 7 000 – 8 000 years ago in deep sea layers and later it reached a modern physical and chemical state after a number of transformations.

Sources of hydrogen sulfide flow into the Black Sea waters. First, existence of deep waters infection was found by N.I. Andrusov, the Assistance Professor of the Novorossiysk University, during participation in an oceanographic expedition to the Black Sea in 1890. According to his proposed theory, hydrogen sulfide was extracted during the decomposition of organisms that became extinct not long ago.

In 1891 N.D. Zelinskiy, Assistant Professor, had another opinion on occurrence of hydrogen sulfide in the Black Sea waters. Based on analysis of soil samples from different depths in different areas of the Black Sea he convincingly demonstrated that hydrogen sulfide in seawater is a waste product of special bacteria that live in the bottom of the sea.

Analysis of literature data available at present allows to make a conclusion that there are three basic sources of H₂S flow into water reservoirs of the Earth and they are different by significance. Relatively they could be divided by the method of hydrogen sulfide flow into water.

The first source provides its flow as a result of renewal of sulfides that are in the water and occur during decomposition of organic matter.

The second source supplies hydrogen sulfide that occurs during the decay of organic matters.

The third source delivers hydrogen sulfide from cracks of the earth crust, i.e., has a volcanic origin (hydrogen sulfide of hydrothermal waters or oil layers).

According to many researchers opinion, the considerable part of the Black Sea hydrogen sulfide is obtained in surface layer of sediments of anaerobic area. Yu. I. Sorokin in 1960 investigated for the first time the intensity of sulfide reduction in deep Black Sea sediments. He found that the most intensive process of hydrogen sulfide formation occurs in the surface layer of the bottom sediments with thickness of 1-2 cm. The rate of sulfide reduction decreased in 20-30 times on the depth of 5 cm in comparison to surface, and this process was not observed at all on the depth of 10 cm.

Intensity distribution of sulfide reduction along the area of the sea floor is not uniform. The maximal values are recorded on slopes in periphery regions (50-100 mg/m² per day), minimal – cholestasia area (1-5 mg/m² per day).

Based on available data we calculated the annual production of sulfur renewed from hydrogen sulfide area of sediments (5,53 x 10⁶ t/year) and quantity of the renewed sulfur accumulated in sediments (0,28 x 10⁶ tones). The total H₂S sulfur flow into water is calculated as difference between total produced and accumulated sulfur – 5,25 x 10⁶ t/year. In terms of H₂S it is 5,58 10⁶ t/year.

Presence of sulfide reduction process in sediments is undoubtful, but the direction and volume of hydrogen sulfide flow over the water-sediment boundary could be judged only by knowing laws of its distribution in silt and bottom waters.

Comparison of data on hydrogen sulfide distribution in bottom and silt waters of surface sediments demonstrate that entry of H₂S from sediments into water could occur only in areas of slope and periphery of a cavity. H₂S concentration in silt waters is essentially less than in the sea bottom along the huge areas of deep sea waters, and its diffusion from sediments is impossible. Thus, experimental data do not confirm the widespread idea that the sea bottom sediments along the entire area of anaerobic zone are the source of hydrogen sulfide in the water depths of the basin.

Generally, the sea bottom sediments not only consume hydrogen sulfide from water in approximate quantity of 4x10⁶ t/year but also generate about the same quantity of hydrogen sulfide (3-5)x10⁶ t/year.

Formation of hydrogen sulfide due to sulfide reduction in the Black Sea occurs not only in sediments but in the water depths as well. The most actively this process occurs under the upper boundary of hydrogen sulfide distribution in the layer of maximum intensity of its oxidation. 48,5-111,5 (average is 80) mg of H₂S (m²/day) are formed in depths of 180-300 m with 9°C or 8,7 x10⁶ t of H₂S/year, and 1,35-64,5 (average is 33) mg of H₂S/ (m²/day) or 3,6x10⁶ t of H₂S/year are formed in depths of 1700-2000 m.

Total production of hydrogen sulfide due to sulfide reduction in water depths of the Black Sea sediments is in 10-100 times higher than in water. It is caused by a considerable thickness of water layer (in 100-1000 times thicker than sedimentary) where sulfide reduction is observed.

Huge influence of water layer thickness on total production of hydrogen sulfide is evident in consistent pattern of H₂S distribution in the Black Sea. On the horizons of 800-1500 m the concentration of hydrogen sulfide in water above the slope and on the periphery of deep-water cavity is higher than in central areas of sea. It is because the intensity of sulfide reduction in water above the slope is higher than in central areas due to bigger quantity of fresh organic matter which is formed and flows here. Besides, the hydrogen sulfide reaches water from sediments in the slope area.

Increase of hydrogen sulfide in the Black Sea waters due to processes of sulfide reduction in water depths is dominating and is estimated as 87-96% from its total increase.

Together with the described above biogenic concepts of formation and occurrence of hydrogen sulfide in the Black Sea, there is an abiogenic (geological) concept as well. According to the latter, about 4-20 % of hydrogen sulfide come to the Black Sea in a ready form mainly from the bottom breed on tectonic faults with ground waters (for example, hydrogen sulfide sources on Eastern coast of the Black Sea in limestone of Jurassic period, resort area Matsesta) and from oil layers.

The date given above allows to consider the Black Sea as one of the world hugest hydrogen sulfide deposit which,

in fact, could be a source of commodity sulfur as well as energy. If to assume that annual increase of hydrogen sulfide of the Black Sea is not less than 4-9 million of tones, then the total of its reserves could be estimated by fairly impressive value of 28-63 billion of tones. Rational and ecologically friendly use of at least the reproductive part of H₂S could give an essential supplement to energy balance of Ukraine and, which is more significant; it could stop the further increase of hydrogen sulfide contamination. Supplies of hydrogen sulfide in the Black Sea are renewable in contrast to other fossil minerals, which is very important as well.

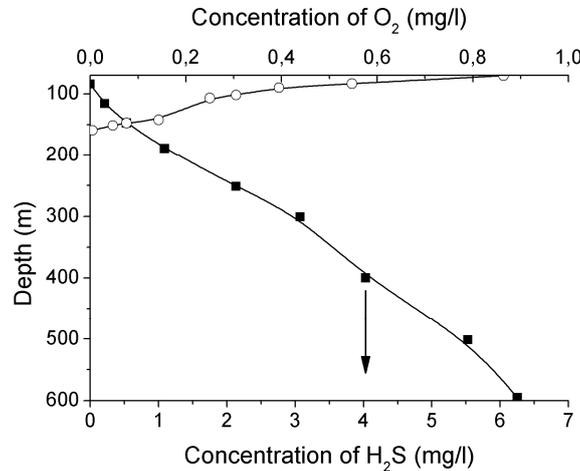


Fig. 1. Average vertical distribution of O₂, H₂S [3] along the defined sea are.

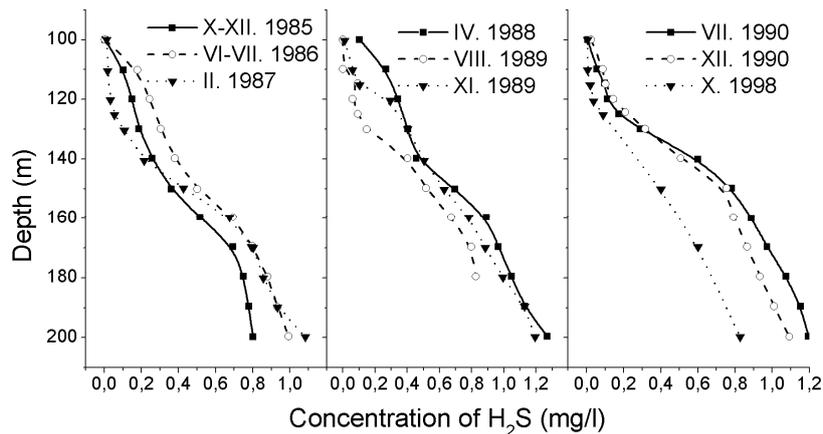


Fig. 2. Average vertical distribution of H₂S in mg/l along the defined sea area [3].

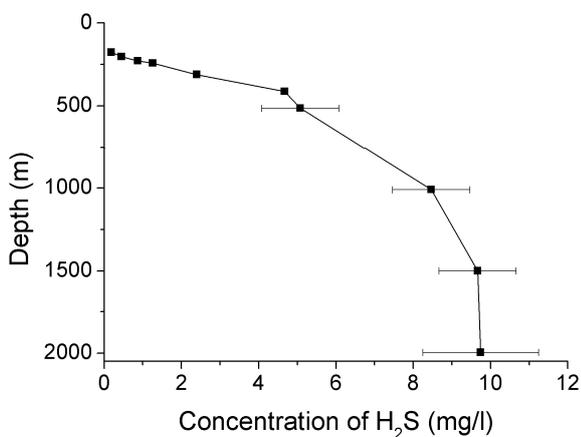


Fig. 3. Concentration of H₂S (mg/l) in the Black Sea [3].

Hydrogen sulfide concentration on the surface waters is controlled by its oxidation. Fig. 1-3 shows the average oxygen (O₂) distribution along the defined sea area, and from data given in the figures it is clear that the average quantity of H₂S dissolved in the Black Sea, based on one liter of sea water is: 1.2 mg – at a depth of 200 m, 2.34 mg – at a depth of 300 m, 8.84 mg – at a depth of 1000 m and 9.6 mg – at a depth of 2000 m.

It should be noted that the levels of hydrogen sulfide in seawater given above are in 1000 times smaller from saturation concentration (hydrogen sulfide solubility at standard conditions is 4.62 ml per 1 ml of water which is equal to 7 g per 1 liter of water).

Atmospheric oxygen, which dissolves in water, reacts with hydrogen sulfide, turning it into sulfuric acid. Acid reacts with mineral salts dissolved in water thus forming sulfates. These processes occur simultaneously, making the Black sea a dynamic equilibrium and maintaining almost constant depth near-surface area free from hydrogen sulfide. Calculations show that not more than one quarter of hydrogen sulfide is converted into sulfates per year as a result of oxidation in the Black Sea.

If annually remove from the Black sea about 25 million tons of hydrogen sulfide it would be equal to obtaining

energy of about 9.25 billion kilowatt-hours (burning of one kilogram of hydrogen sulfide gives energy of 1334 kJ, and kilogram of methane – 2044 kJ). This rate is 6.3 % of the RF NPP power production (147.6 billion of kilowatt-hours in 2005) and 10.4% of Ukrainian NPP power production (88.782 billion of kilowatt-hours in 2005).

Thus, the Black Sea as the source of hydrogen sulfide could provide an essential supplement into the energy balance of Ukraine. But how to implement this idea in practice?

Methods of hydrogen sulfide extraction

The solution of technical task of H₂S extraction from seawater is caused by the following factors which are different on complexity:

- H₂S is present in seawater in both free and bound states as a part of hydrosulfates. Taking into account the above mentioned data, one tone of deep water contains from 1.2 up to 10 g of H₂S and its compounds;
- the problem of raising the saturated deep sulfurous mass of sea water;
- the allocation of hydrogen sulfide extraction from sea water.

Existing proposals and methods in this area have varying degrees of testing and, as a consequence, their real options for technical implementation.

Let us consider some of them.

Available proposals and practices in this area have different degree of testing and, as a result, options of their technical implementation. Consider some of them.

The [3] describes the proposal of raising the bottom layers of seawater from areas with abnormally high levels of hydrogen sulfide composition on certain technological height, where it is then exposed to electro hydraulic impact which provides the separation of hydrogen sulfide, and return the treated water back into the Black Sea.

Other project offers to use the membrane absorbers with high-selective modified membrane (for example, sulfur gel, sulfacil) or glycol and amines straight at depth. H₂S is dissolved in these absorbers hundreds of times better than in seawaters which makes very efficient extraction of H₂S from seawaters with its further extraction on the surface.

The same project offers a method to extract the hydrogen sulfide from seawater based on the fact that under the effect of ultraviolet radiation of a specific wavelength (180-253 nm) H₂S selectively dissociates into hydrogen and sulfur $H_2S + h\nu \rightarrow H + HS$. During implementation of this method it is offered to place the powerful source of UV radiation at a required depth where photo dissociation of H₂S and hydrosulphites will occur. The resulting hydrogen will rise along with the water-insoluble sulfur.

Promising is to use ozone, bubbled into the seawater to the required depth for oxidation of hydrogen sulfide and hydrosulphites. The method is based on the known technology for purification of reservoir and drainage waters of sulfur plants. The sense of this method is in oxidation of hydrogen sulfide in water by ozonated air to form water and sulfur.

A rather elegant solution is offered to treat the seawater by UV or ozone without lifting it to the surface: to put down to a depth a pipe with the closed bottom part and specially shaped holes from which water jets ($V \sim 100$ m/s) are scattered at the bottom level of pipe and vibrator under influence of hydrostatic pressure. H₂S and hydrosulphites extraction and dissociation occurs in the tube due to such physical influences. The formed gas is pumped out to the surface, the aerosols are condensed on walls, flow down into special modules from which a condensate is pumped to the surface or into the sea.

Appealing is the copyright certificate for the method to clean natural reservoirs from hydrogen sulfide where it is offered to use vertical channel with rigid walls in the sea. Raising the water by this pump from this channel once, one can get gas and water fountain due to difference in the sea hydrostatic pressure at the level of lower-cut of the channel and mixture of gas and water pressure at the same level inside the channel. Thus, according to the authors, there is almost no need to spend energy on pumping the deep layers to the surface to lift the hydrogen sulfide masses from the sea bottom using the so-called air-lift effect (gas lift). The essence of this is the following.

Vertical plates, for example, from activated aluminum which is typically used in the galvanic protection of ship hulls, are placed in the bottom part of the tube (channel) to provide the upward water movement along the tube. In interaction with seawater such an alloy partially decomposes water, emitting the hydrogen. Hydrogen, going upwards, takes water with it along the tube (primary air-lift). The dissolved hydrogen sulfide starts its emission from water-hydrogen mixture that moves to the water surface due to pressure drop and, thus, enhancing the air-lift effect.

We propose a method to extract hydrogen sulfide from natural aquatic environment and from deep water layers of the sea by acidizing the sour water with a mineral acid and its aerating. According to the authors of the project, part of the sulfuric acid obtain here with is assumed to use for acidizing the initial water, and to dispose the heat obtained as a result of hydrogen sulfide oxidation.

Methods of disposal (dissociation) of hydrogen sulfide

In addition to the problem of hydrogen sulfide disposal from natural ponds there is also a problem of disposal of hydrogen sulfide obtained as a result of different multi tonnage technological experiments. Thus, for example, in a concentrated form it is formed during hydro treatment of oil, during extraction from natural, technological and ventilation gases. Studies in this area are directly related to the problem of disposal of hydrogen sulfide from the Black Sea.

A method to produce electricity from the Black Sea water by extracting hydrogen sulfide from it and its burning in

gas-turbine machine, is given in [3] and it was developed by other authors. Here, characteristics and scheme of power plant with 10 MW power are given and estimation of economic efficiency as well. However, direct burning of hydrogen sulfide is not the only one method to obtain energy. Besides, this method has an essential disadvantage: associated gases are emitted into the environment and require use of highly expensive purification.

One of the possible methods to eliminate this disadvantage is to use such methods of hydrogen sulfide dissociation as plasma-chemical, radiation (radiolysis), thermal and photolysis.

Works in the area of plasma-chemical dissociation have been carried out for a long time already and they are successful. These studies offer a cost-effective diagram of the technological process of plasma-chemical dissociation of hydrogen sulfide to produce two valuable products – polymeric sulfur and hydrogen.

One of the methods to obtain hydrogen both from water and hydrogen sulfide is radiolysis.

Values of radiation yield of hydrogen $G(H_2)$ for pure water are in the range from 0.45 up to 1.65 mol./100 eV depending on conditions and radiation. It is possible to increase significantly $G(H_2)$ at radiolysis of powder-like hydroxides or hydrates that restore by water or steam during dehydration. In this case, radiation yield of hydrogen is in average of 20.41 mol./100 eV.

Studies of radioactive decomposition of hydrogen sulfide are of specific interest for obtaining hydrogen from hydrogen sulfide. Experiments in this area were performed in two stages.

The first stage includes series of experiments performed on pure hydrogen sulfide (temperature - 250 °C, radiation dose – 1.5 Mrad).

The second stage includes decomposition of hydrogen sulfide with fine-dispersed catalyst Al_2O_3 (with temperatures 200 °C and 25 °C, radiation dose γ -radiation was 0.5 Mrad). Results of studies are given in the Fig. 4.

As it is clear from the Fig. 4., all dependencies of gaseous hydrogen yield from density of hydrogen sulfide in the studied area have a linear character. Increasing the density of H_2S and temperature we increase the hydrogen yield.

In order to increase the hydrogen yield we experimentally exposed to ionizing radiation mixture of hydrogen sulfide with carbon monoxide. It was found, that the most optimal temperature range for this process is 400-500 °C, and radiation dose is $(2.5-3.0) \cdot 10^{17}$ eV/cm³. Herewith, the conversion level was 50%.

With thermal dissociation of hydrogen sulfide it was shown that H_2S dissociation becomes evident starting with 400 °C and goes almost until the end with temperature of 1690 °C.

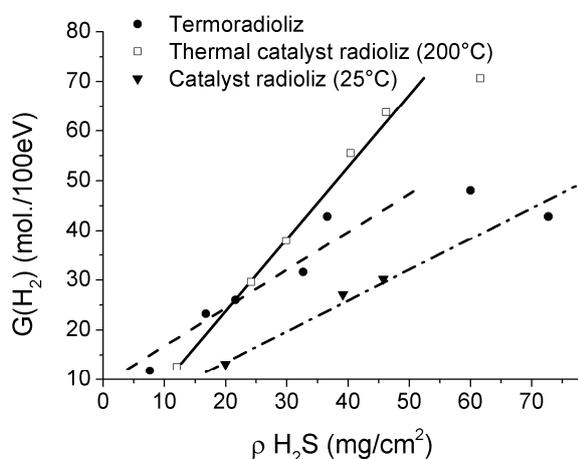


Fig. 4. Dependency of gaseous hydrogen yield from density of hydrogen sulfide ρ .

from ecological point of view, since it is related to emissions of harmful associated gases into the atmosphere. Using solar oven from ~ 3 mol of H_2S we obtain 1 mol of H_2 . Therefore, the conversion level is approximately equal to 34%.

The basic principle of photolysis dissociation is to select such a wave length of luminous radiation which is subject to dissociation of the substance that this irradiation should mould meet (or should be close to maximum (pick)) of luminous absorption. Such maximum corresponds to fluctuation frequencies of atoms in molecules of this substance. These fluctuations are enhanced under light influence with the wave frequency close to the frequency fluctuation wave, since are in resonance with luminous wave similar to the dissociation process of triatomic molecule of nitrogen dioxide described in [4]. Such resonance interaction explains strong luminous absorption with the corresponding wave frequency which, as a result, leads to breaking the bonds between atoms of hydrogen sulfide.

H_2S molecule has a structure close to isosceles triangle with S atom on the top of it. Angle between bonds of S with H atoms is equal to 92°13', interatomic spacing 2(S-H) is 1.336 Å. Fluctuation wavelength of hydrogen atoms with respect to sulfur atom is about 2730 Å (rather 2721.92 Å and 2733.36 Å). These frequencies are in the wavelength range of the emission spectrum of a mercury lamp (2483-5770 Å), the most intense line in this spectrum has a

Thermal dissociation of H_2S is observed also using solar oven that provides temperature of 1027-1727 °C.

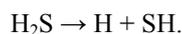
Typically, the Claus process is used to split H_2S into hydrogen and sulfur: method of industrious production of sulfur from hydrogen sulfide. However, this process is used to extract sulfur in a number of catalyst converters with Al layers with temperature of 204-260 °C, which is obtained by burning part of H_2S in the air (about 1/3).

Thus, we obtain steam as well. Associated gases are emitted into environment or undergo costly purification.

Comparison of economic and energy efficiency of the Claus process and the use of solar oven show the advantage of the later. Using solar oven instead of steam we obtain hydrogen. Heat from its burning in the air – 286 kJ/mol, and for its obtaining we spend only 124.5 kJ/mol and additional 34 kJ/mol of electric heating to heat H_2S if there is no sunshine. Besides this energy efficiency, heat on solar oven is also profitable

wavelength of $\lambda = 2537 \text{ \AA}$ close to the oscillation frequency of the hydrogen atoms in the molecule of H_2S .

Primary action of photolysis effect on H_2S is in splitting of atomic hydrogen to form free radical SH.



Further, SH radicals and H atoms react with each other to form molecular hydrogen and sulfur. It is shown that among all possible reactions, reactions related to change in ratio between SH radicals are mainly implemented:



and



i.e., only 13% of radicals form hydrogen, and 87% of radicals react with regeneration of H_2S molecules and sulfur formation.

In order to study hydrogen one can use photocatalyst decomposition of H_2S on cadmium sulphide deposited on cation-exchange film. In some experiments films were activated by small-grain associates (new phase formation) deposited on them, containing atoms of noble metals. Thus, film with thickness of 0.3 mm of cation-exchange polymer based on sulfonated fluoropolymer MΦ-4CK similar to nafion were used. The photocatalyst film was put into the solution of Na_2S and it was irradiated with filtered light from a mercury lamp ДПИИ-1000. Results of such studies are given in the Table 1.

Table 1.

Photocatalyst activity of sulfides of Zn, Cd, Sn on polymer MΦ-4CK in reaction $\text{H}_2\text{S} \rightarrow \text{H}_2 + \text{S}$
($\text{Na}_2\text{S} = 10^{-2} \text{ mol/l}$, $\text{pH} = 10$)

Active component of photocatalyst	CdS		CdS-Pd		CdS-Pt	CdS-ZnS	ZnS	SnS ₂
λ , (nm)	436	365	436	365	436	365	436	365
Quantum yield (%)	0.00	0.08	1.5	1.5	3.0	9.5*	0.009	0.3

*) $\text{Na}_2\text{S} = 10^{-1} \text{ mol/l}$

As it is clear from the table, quantum yield of hydrogen increases when photocatalysts are activated by salts of noble metals.

Marginal efficiency of solar energy conversion in reaction of H_2S photocatalytic decomposition is in the range of $\lambda > 2000 \text{ nm}$ and does not exceed 10 %. At the same time, for reaction of H_2S photocatalytic decomposition it would be reasonable to consider "commercial" marginal efficiency determined as combustion heat of the obtained hydrogen (ΔH^0) ratio to solar energy falling into the photocatalytic system.

For $\lambda_{\text{nor}} = 1000 \text{ nm}$ marginal efficiency is 43%, i.e., rather high. Thus, the conversion efficiency of solar energy falling on 1 m^2 area on a clear day at the latitude of Novosibirsk ($\approx 500 \text{ W/m}^2$) would allow to receive up to 60 l of hydrogen per hour.

Considering the above given methods of extraction and decomposition (dissociation) of hydrogen sulfide it is necessary to mention the following disadvantages:

The described methods are rather complicated and resource and energy intensive;

The descriptions almost do not contain data on economic efficiency and estimation of their use in the closed complex of energy production.

However, despite this and with appropriate improvement, separate elements of each method mentioned above could be used to create hydrogen sulfide energy generating complex (HSEGC).

Based on the given above data one can make a conclusion that it is necessary to develop the concept of optimal HSEGC.

ENERGY FREE METHODS TO EXTRACT HYDROGEN SULFIDE WATER WITH A GIVEN WATER DEPTH

Concept of optimal HSEGC

The problem of energy free extraction of hydrogen sulfide water of the Black Sea from the given depths is the main problem in the list of important problems (without which it is impossible to develop the concept of hydrogen sulfide power industry and creation of HSEGC on its basis). It is a key problem not only for extraction of hydrogen sulfide to the sea surface, but it has huge importance for improvement of environment ecology. Thus, in the later case it is necessary to consider the effect of positive effect of hydrogen sulfide extraction on deep sea layers (decrease of hydrogen sulfide composition on the given sea depth) and to remember that waste-water has a residual contamination by hydrogen sulfide and should be delivered to the depth which corresponds to natural level of its composition bin the sea water.

Why do authors put a question on searching for the method to extract the hydrogen sulfide water to a height of technology, and do not discuss the problem of producing the hydrogen sulfide at depth and its delivery to the sea surface?

The answer is the following:

First of all, obtaining of hydrogen sulfide at depth assumes arrangement of complicated and costly equipment on big depths in aggressive environment.

Secondly, this equipment should be either constantly moved due to the depletion of hydrogen sulfide in the surrounding layers of the water or rest still, but it would be necessary to move the water flows at big depths which is energetically unprofitable and, therefore, unrealistic.

Method to lift the hydrogen sulfide water to the level exceeding the sea level (technological height of lift) with further extraction of hydrogen sulfide by natural or some other method is an alternative to the method of hydrogen sulfide generation at depth. At the same time, the hydrogen sulfide water delivered to the sea surface will emit the hydrogen sulfide dissolved in it as a result of decrease of pressure in hundred times [5-7]. The volume of hydrogen sulfide, similar to data on preliminary oil stabilization (degassing), could reach up to 50 – 60% of its primary composition under normal conditions.

With such method we have solution to several problems that allow increasing efficiency of HSEGC work:

- Almost complete extraction of hydrogen sulfide from water and its further utilization with generation of hydrogen and polymeric sulfur;
- Generation of electric power on hydro power generators that convert into electricity the potential sea water energy lifted to technological height;
- Generation of electric power in thermal machines (for instance, Sterling engine) from the use of the temperature difference between surface and deep waters;
- Increase in received power from hydro power generators by increasing the height of the technological rise of water, caused by the use of the difference between the depth and the surface salinity of sea water.

Thus, search and justification of methods for energy profitable lift of hydrogen sulfide to a necessary technological height above the sea level is relevant and timely challenge problem to encourage the development of a fundamentally new type of hydrogen energy – hydrogen sulfide.

The task of search for energetically low cost methods to extract hydrogen sulfide water from the bottom of the Black Sea is not new. A big number of studies have been performed in this area and encouraging results have been received. However, all above described methods have either costs for electric energy or chemical reagents to ensure the lift of sea hydrogen sulfide water. Therefore, the task to search the alternative and energetically profitable schemes based on new physical mechanisms is still relevant.

The following description will focus on energetically profitable method to extract hydrogen sulfide water from the set depth of the Black Sea.

Justification of possibility to lift hydrogen sulfide from the Black Sea water depths specified by gas lift

The method to calculate the fountain oil lift in well is used to calculate the lift of hydrogen sulfide water from the bottom of the Black Sea. The fountain well operation is one of the basic methods of oil extraction. The fountain method of oil extraction is the cheapest one because it does not require additional energy costs on oil lift and only the reservoir energy is used when this method is applied.

Calculation of fountain lift comes to determination of length and diameter of eduction tube, its capacity and the pressure distribution along the depth.

Let's consider the element of the lift with length of dl . The pressure drop on this site we mark as dp . Considering the process to be static and neglecting the inertial resistance which is small in real terms, and write the equation of momentum conservation in the form of:

$$dp = \gamma_m dl + aQdl. \quad (3)$$

Here, γ_m – specific weight of hydrogen sulfide water which is depth function H , a – factor that characterizes friction losses. In equation (3) we do not take into account water temperature and its effect on gas emission along the lift length.

Neglecting gas density in comparison to seawater density write the expression for gas specific weight of water-gas mixture in the form of:

$$\gamma_m = \gamma_v / (1+W), \quad (4)$$

where W – volume in relation to single water volume which is occupied by hydrogen sulfide in this section; γ_v – specific weight of seawater. We assume that gas solubility in seawater is described by linear law – Henry isotherm. In this case, the gas volume G emitted from one unit of seawater at pressure p , will be equal to:

$$G = G_s - \alpha \cdot (p_s - p), \quad (5)$$

where G – initial gas factor (gas saturation), i.e. the volume of hydrogen sulfide dissolved in a unit volume of liquid at saturation pressure p ; α – solubility factor of hydrogen sulfide in seawater (solubility factor of gas in liquid at a given temperature, equal to the volume of the dissolved gas (in ml) per 100 g of water at a partial pressure equal to the atmospheric pressure). Please bare in mind that gas volumes G and G_s are reduced to normal conditions. Assuming gas to be ideal, from (5) we obtain that volume of the emitted gas at this depth G_l and reduced to pressure at the same depth p , is equal to:

$$G_l = \frac{G \cdot p_0}{p} = \frac{G_s - \alpha(p_s - p_0)}{p} p_0. \quad (6)$$

If gas bypass is small, i.e., relative velocity of gas bubbles and seawater is small in comparison to speed of lift, then we can put $W = G_l$.

Similar to gas-oil lifts, we will assume that partial phase separation and formation of “gas bearing” near pipe walls is observed for the lift of hydrogen sulfide water as it moves in the trunk blower. The reason for such phenomenon is the following. Presence of parabolic velocity profile of the liquid (Poiseuille profile), leads to different velocity of gas bubble regarding the liquid at its different points (bubbles) of the surface. Since the gas bubble moves somewhat faster than liquid, then, the liquid velocity regarding the bubble surface from the side turned to the pipe wall is bigger than from the side which is closer to the pipe centre. Thus, in cross-section of the pipe there is a pressure drop directed from the axes of the pipe to the wall. Under the effect of this pressure drop there is a displacement of bubbles to the periphery (wing lift effect). As a result, gas bubbles are concentrated near the pipe surface, the near wall gas layer occurs and it decreases dramatically the loss of gas-water mixture for friction.

Minor value of friction forces is confirmed by calculations and practical results of lifting of gas-oil mixtures. In the calculation of trunk blowers for gas-oil mixtures the practice shows that friction losses in trunk pipes are typically minor and do not exceed several percents from total pressure drop along the lift length between bottom hole and entrance. The lift, where the phase slip and losses are neglected, is called “ideal”. Thus, in further calculations we will neglect the latter component in the right part of the equation (3).

For equilibrium conditions with fixed temperature according to Gibbs phase rule (J. W. Gibbs found that the number of coexisting equilibrium in any system of phases cannot be greater than the number of generators of these components plus phase, usually, 2 (published in 1876)) the status of the system is determined by a single parameter – pressure and for non-equilibrium conditions – another parameter is velocity of pressure change in the system $dp/d\tau$.

One can consider the hydrogen sulfide water lift process under nonequilibrium conditions. Let the equilibrium solubility isotherm is described by a linear Henry law: $G = \alpha \cdot p$, and the nonequilibrium process of gas emission (hydrogen sulfide) – by equation [5]:

$$t_0 \frac{dG}{dt} + G = \alpha \cdot p, \quad (7)$$

where t_0 – relaxation time.

Since the defining parameters in equation (7) are pressure p and its time derivative $dp/d\tau$, it is not difficult to obtain its solution in general form:

$$G = \alpha \cdot \left[p - \int_0^t \exp\left(-\frac{t-\tau}{t_0}\right) \frac{dp}{d\tau} d\tau \right]. \quad (8)$$

Solution (8) can be analyzed. Equation (8) corresponds to the Henry law at very small pressure rates in the system ($dp/d\tau=0$), as well as at very small relaxation time, i.e., at instant relaxation time ($t_0 \rightarrow 0$). At finite values of $dp/d\tau$ the dissolution curve is characterized by hysteretic dependence: when pressure is reduced $dp/d\tau < 0$ then nonequilibrium curve is above the equilibrium $G = \alpha p$, i.e., gas emission is reduced as compared with equilibrium process and at $dp/d\tau > 0$ – below the equilibrium curve the gas emission increases compared to equilibrium process.

This concept can be used to calculate fountain lift. Operation of perfect lift for gas-water mixture can be considered to determine its basic qualitative and quantitative characteristics.

Under equilibrium conditions the pressure dependence in fountain lift from the depth is determined by equation, that follows from (3) and (5):

$$\frac{1}{\gamma_v} \frac{dp}{dl} = \frac{1}{1 + [G_s - \alpha(p - p_s)] \frac{p_0}{p}}, \quad (9)$$

where p_0 – atmospheric pressure.

Under nonequilibrium conditions the equation describing the operation of perfect lift will be the following:

$$\frac{1}{\gamma_v} \frac{dp}{dl} = \frac{1}{1 + \left[G_s - \alpha \left(p - p_s - \int_0^t F(t-\tau) \frac{dp}{d\tau} d\tau \right) \right] \frac{p_0}{p}}. \quad (10)$$

In perfect lift, the rate of pressure decline should be constant $dp/d\tau = \delta = const$. In our case, this can be the implementation of the requirements:

$$\frac{dl}{dt} = -\frac{\delta \cdot (1+W)}{\gamma_v} \quad (11)$$

In view of (11) the equation of nonequilibrium lift (10) can be rewritten as:

$$\frac{1}{\gamma_v} \frac{dp}{dl} = \frac{1}{1 + \frac{p_0}{p} \left[G_s - \alpha \left(p - p_s + \delta \cdot \int_0^U F(t) dt \right) \right]}, \quad (12)$$

where: $U = \frac{p_s - p}{\delta}$.

Thus, the theoretical concepts allow to describe the pressure distribution in the fountain lift along the depth for cases of equilibrium and nonequilibrium lift.

Numerical simulation of hydrogen sulfide seawater lift from given depth by gas-lift method

Dependence of pressure in the fountain lift from driving depth can be calculated using equation of perfect equilibrium fountain lift (9). The following value of parameters can be selected for calculations [5]: $G_s = 7.0 \cdot 10^{-3} \text{ (m}^3/\text{m}^3\text{)}$; $\alpha = 7.0 \cdot 10^{-4} \text{ MPa}^{-1}$; $p_s = 0.1 \text{ MPa}$; $H = 1000 \text{ m}$; $\gamma_v = 10.0 \cdot 10^3 \text{ Pa m}^{-1}$.

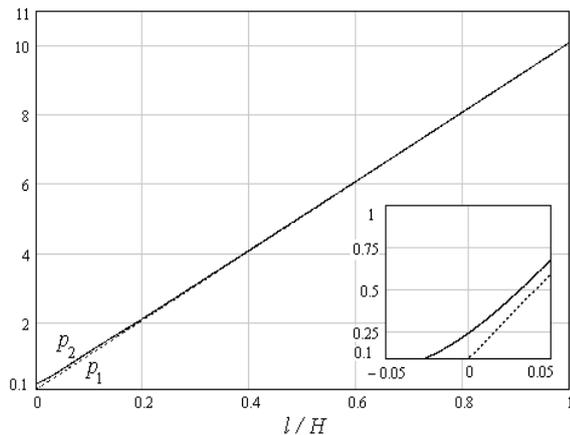


Fig. 5. Dependence of pressure p_1 (MPa) in the sea and in the fountain lift p_2 (MPa) from dimensionless depth l/H .

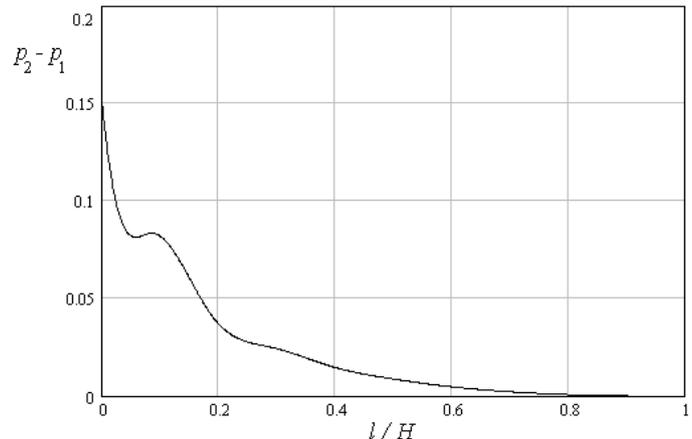


Fig. 6. Dependence of pressure drop in the sea and in the fountain lift $\Delta p = p_2 - p_1$ from dimensionless depth l/H .

Fig. 5-6 provide the results of numerical solution of equation (9) and they show the dependence of pressure and pressure drop in open sea as well as inside the fountain lift from depth. From Fig. 5 it is clear that hysteretic dependence of pressure from depth of the fountain lift is observed with chosen lift parameters. In the open sea, pressure p_1 changes from 0.1 MPa on the sea surface up to 10.1 MPa at the depth of 1000 m. Another picture of pressure dependence from depth is observed when fountain lift is filling with deep water with maximum composition of hydrogen sulfide ($\sim 10 \text{ mg/l H}_2\text{S}$). In this case, liquid column in open sea is not compensated by pressure of gas-saturated water and, thus, there is a hysteretic dependence of pressure from depth (See insertion in Fig. 5). The “Coercive force” that corresponds to pressure difference in the lift and in the open sea, characterizes the fountain lift efficiency.

Numerical calculations of pressure drop at the sea level for the selected parameters (See Fig. 6) give a value of the order of 0.15 MPa which is equivalent to the height of water rise $h = 15 \text{ m}$.

Now, pressure dependence from depth can be considered under the same parameters that are used above, in nonequilibrium fountain lift. To do this, in equation (12) we specify a function of non-equilibrium in the form of $F(t) = \exp(-t/t_0)$. Missing parameters assume to be equal to: $\delta = -0.1 \text{ MPa/min}$; $t_0 = 0.3 \text{ min}$.

Numerical calculations show that taking into account the nonequilibrium of the fountain lift leads to minor increase of pressure drop $p_2 - p_1 = 0.16 \text{ MPa}$ and to increase of the lifting height of hydrogen sulfide water up to $h = 16 \text{ m}$.

Analysis of the performed calculations shows that the lift efficiency increases with the increase of thickness of non-hydrosulfuric layer near the sea surface and with increase of driving depth of the lower cut-off fountain lift [8].

Mechanism for energetically efficient process to extract the hydrogen sulfide from the Black Sea water

A great number of patents are dedicated to the problem of energetically efficient process to extract hydrogen sulfide from the seawater. Two of them will be described as an example; their description is given in [5].

The essence of one of them is to place a vertical pipe at the necessary depth with polymer gas-permeable membrane selective to hydrogen sulfide which is pre-installed on the low end and the subsequent creation of the vacuum after the membrane. The membrane is oscillated due to energy of sea waves to intensify the process of hydrogen sulfide extraction. Partial pressure of hydrogen sulfide at the necessary depth reaches significant value and because of vacuum after membrane the hydrogen sulfide diffuses through its wall into the pipe and then it is compressed for further use.

The disadvantage of this method is the necessity to use mechanisms to create vacuum after membrane as well as decrease of hydrogen sulfide concentration in layers close to membrane which is caused by speed limit of hydrogen sulfide diffusion in deep layers. The latter circumstance causes poor efficiency of hydrogen sulfide extraction.

The second method of hydrogen sulfide extraction from seawater involves placing a vertical pipe into the seawater at the necessary depth, the transmission of water with hydrogen sulfide along the pipe and separation of hydrogen sulfide from water. Plates from activated aluminum, for example, are placed in the bottom part of the pipeline to create the gas-lift effect. The plate material partially decomposes water interacting with the seawater and emitting, herewith, hydrogen which rises upwards and draws water into the pipe. The extraction of the dissolved hydrogen sulfide starts because of pressure drop from the suspension moving towards the water surface, and it contributes to the effect of gas-lift.

The disadvantage of this method is the necessity to use activated plates that leads to rise in cost of the process of hydrogen sulfide extraction caused by the necessity of periodic change of spent plates. Moreover, hydrogen produced at water decomposition, reacts with impurities in the seawater that limits the gas-lift effect and, ultimately, causes small efficiency of hydrogen sulfide extraction from water.

The alternative towards the mentioned above methods of hydrogen sulfide extraction from the seawater is the method proposed by the authors of this article as well. The idea of the proposed method of hydrogen sulfide extraction should be taken from above section of numerical simulation. They allow to formulate basic requirements to energetically efficient method to extract hydrogen sulfide water from the given depths.

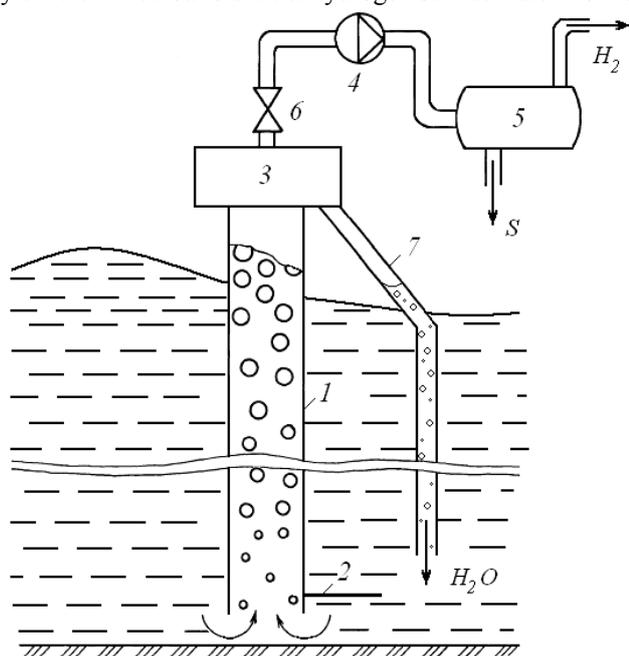


Fig. 7. The method to extract hydrogen sulfide from the Black Sea water.

The proposed above method to extract hydrogen sulfide from given depths is schematically shown in the Fig. 7 and is implemented as follows:

Vertical pipeline 1 is equipped with shutter 2 and placed into the seawater on the required depth. The cavity of the pipeline is free of water. Thereafter, the shutter 2 is opened and water enriched with hydrogen sulfide raises upwards by pipeline 1. As pressure raises upwards, and therefore, downwards, the higher water is the more saturated by hydrogen sulfide it gets, and it further vertical movement upwards is provided by the gas-lift effect. In the mechanism 3, hydrogen sulfide is separated from water and, using compressor 4, it is transferred to the mechanism 5 where it is decomposed on hydrogen and polymeric sulfur. Water purified from hydrogen sulfide is returned to the sea through the branch pipe.

Efficiency of this mechanism is determined by the cross-sectional area of the pipeline, depth of it immersion in the sea and height of lift of the lower level of the mechanism 3 (height of lift of hydrogen sulfide water in the pipeline). According to numerical calculations, the efficiency of the machine will make not less than 20 l/min of hydrogen sulfide [5] upon condition that

50% of hydrogen sulfide emission from the seawater.

Thus, the machine described above to extract hydrogen sulfide from the given depths allows in a manageable way and without energy costs to deliver water, enriched by hydrogen sulfide, to a sufficient height where it will be sequentially degassed and then undergo potential and heat energy by known methods [9].

The obtained hydrogen can be used as ecologically pure fuel and polymeric sulfur - as raw materials for the chemical industry. The return water with residual composition of hydrogen sulfide should be directed to the sea at the depth where the concentration of hydrogen sulfide in the return and sea water are the same.

Experimental simulation of energetically efficient method to extract hydrogen sulfide from the Black Sea

The method described above to lift the hydrogen sulfide from water with gas-saturation of 10 mg/l, that equal to depths of the Black Sea of 1000 m was implemented in simulation experiment.

The machine, scheme of which is given in the Fig. 8, allowed simulating the gas-saturation of water at the necessary level.

Air was used instead of hydrogen sulfide in experiment. The pump 5 through T-socket 4 produced the overpressure in the capillary with internal diameter of 0.02 m which led to the emergency of regular sequence of bubbles (Fig. 9). The size of air bubbles and the resulting gas-saturation were estimated visually using line-up. In the Fig. 9 one can see the meniscus that was raised to the level of water in the tank 1 in the capillary 3 and two air bubbles moving in the capillary.

Experiments showed that the height of gas-saturated water lift was 0.01-0.015 m when the length of capillary 3 was 1 m. The obtained result could be converted using the principle of similarity to estimate the water lift in a full-scale facility. In this case, the value of its lift in the pipe equal to 10-15 m could be obtained under condition of complete water degassing which is observed in this experiment. This value quantitatively corresponds to the result of numerical

simulation given in the above section.

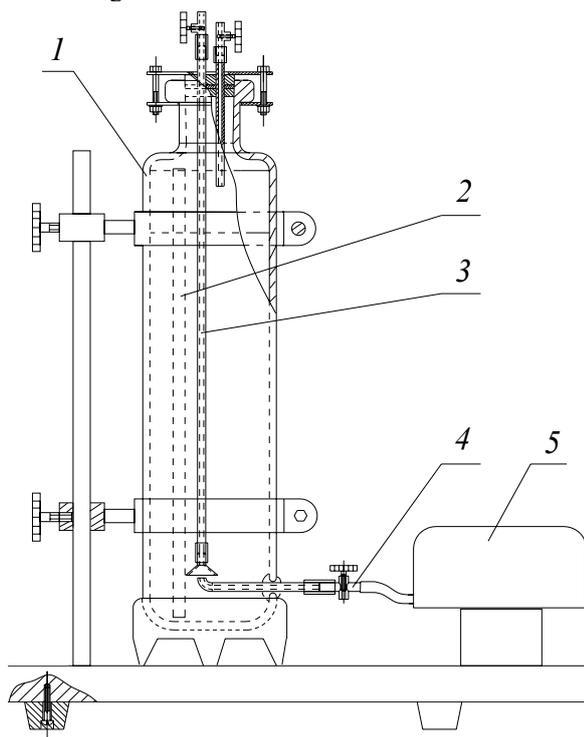


Fig. 8. Scheme of the facility for simulation of water gas-lift: 1 – glass vessel; 2 – ruler; 3 – capillary; 4 – T-adaptor; 5 – pump.



Fig. 9. Fragment of the facility during simulation of air-saturated water lift.

Thus, possibility to lift the gas-saturated water is demonstrated in this model experiment and this is an encouraging factor in solving the problem of energetically efficient method to extract the hydrogen sulfide from the Black Sea water.

ALTERNATIVE ENERGY OF HYDROGEN SULFIDE WATER OF THE BLACK SEA AND THE BLACK SEA REGION

Stimulus and basic elements for the development of hydrogen sulfide energy of the Black Sea Region

Stimulus for the development of the RES-based energy industry is an anticipation of depletion of traditional energy-producing materials and environmental degradation as a result of traditional energy functioning [10].

RES-based energy industry is the most dynamic and perspective sector of the global energy industry which solves a number of problems of depletion of traditional organic energy resources but also contributes to environmental safety. The most obvious areas of RES development are:

- Hydrogen energy;
- Wind;
- Solar;
- Geothermal;
- Hydroenergy (large and small);
- Bioenergy;
- Energy based on hydrogen sulfide dissolved in the seawater or being in the gas phase of mud volcanoes;
- Environmental energy (secondary resources such as municipal solid wastes (MSW), differences in salinity of sea and fresh water).

Predictions of global energy development in the coming decade are that in 2040 50% of electricity will be produced from RES, including in Ukraine – at least 30%. In particular, it will be stimulated by the Law of Ukraine “On Alternative Energy Sources” (No. 555-IV of 23/02/03), as well as programs and legal documents developed on its basis.

The Black Sea Region, in this respect, is the most promising because here together with existing traditional renewable energy resources there is almost inexhaustible reserve of hydrogen sulfide which is not much inferior to the energy value of natural gas. Naturally, a comprehensive study of the problem of complex energy extraction from all existing sources of the Black Sea and Near Black Sea Region is of great interest.

Search of optimal methods to use it in relation to specifics of the Near Black Sea Region is an important problem. The following description will focus on types of energy storage contained in the Black Sea and Black sea Region, as well as how it could be recycled.

Hydrogen sulfide energy sources

The Black Sea is not the only one water pond on our planet waters of which are full of hydrogen sulfide. Hydrogen sulfide is also in waters of Cariaco basin, Red Sea, near the Peru coast, Namibia, in some deep fjords of Norway. The Red Sea waters have one of the biggest concentrations of this gas; however, the Black Sea has the first place among the above listed regions on weight of the hydrogen sulfide dissolved in its waters.

Until recently, there was an opinion that it is unreasonable to extract hydrogen sulfide from the Black Sea water due to its unpredictable ecological consequences and small energy efficiency of the expected effect because of low level of the hydrogen sulfide concentration. The hydrogen sulfide is absent in surface layer of 100-150 m thickness of the Black Sea. Its concentration increases with the increase of depth and becomes maximal at the bottom of the Black Sea which is of the order of ~ 10 mg/l [3].

However, a closer study of the problem of depositing the Black Sea hydrogen sulfide showed that the possibility to obtain hydrogen sulfide from the depths of the Black Sea based on the latest technological developments that allow to extract the hydrogen sulfide water spending minimal energy on its rise in an ecologically safe manner [11] and providing the optimal conditions of extraction the gaseous hydrogen sulfide from sea water [12].

Electricity could be produced from the obtained hydrogen sulfide directly using high-temperature solid oxide fuel elements or decompose it into polymeric sulfur and hydrogen which naturally will require additional costs for hydrogen sulfide decomposition.

If annually extract about 25 million tones of hydrogen sulfide from the Black Sea it would be equal to obtaining energy of about 9.25 billion of kilowatt-hours (one kilogram of hydrogen sulfide generates 1334 kJ when it is burnt). This rate is 10.4% from the level of electricity production on NPPs of Ukraine (88.782 billion of kilowatt-hours in 2005). Thus, the Black Sea as a source of hydrogen sulfide could provide an essential contribution to the energy balance of Ukraine [3].

To have such a contribution it is necessary to solve a problem of energy efficient delivery of hydrogen sulfide to the sea surface.

The authors of this article [5] proposed a solution to this problem using natural gas-saturation of the Black Sea water.

Hydrogen sulfide extracted in such a way is sent immediately to obtain electricity directly in high-temperature solid-oxide fuel element or to be decomposed into hydrogen and sulfur.

Specific hydroelectric resources of the Black Sea

Hydroelectric resources proposed for conversion into electricity are of specific nature: they could be acquired only by the rise of hydrogen sulfide water to a given height of technology. [5].

The height difference generated due to gas lift could be effectively converted into electricity using hydraulic turbines. The hydraulic turbine converts the energy of under pressure water into mechanical energy of rod rotation. Tidal hydroelectric hydropower plant (THP) can be used as the prototype. However, unlike THP which always operate with variable pressure, the proposed power plant will operate with constant pressure drop.

Parameters of THP that are going to be constructed in Russia in Tugursky and Penzhinsky Bay of the Okhotsk Sea and in Shantar Islands where the tide height is 13 m [10] could be compared with their parameters to assess the effectiveness of hydropower station on the return hydrogen sulfide water.

As it was mentioned in [5, 13], height drop may reach 13-15 m when hydrogen sulfide water is extracted. Use of micro hydropower plant with propeller wheel with force equal to 4.0-10.0 m, area of an intake machine of 0.45 m² and flow of 10-0.21 m³/s can provide electricity with power up to 10 kW.

Technologies for conversion of the Black Sea thermal energy

Since the Black Sea is giant heat storage of solar energy, it is possible to use its heat. One of the technologies to obtain electric power from thermal energy of the Black Sea is OTEC technology (abbr. from Ocean Thermal Energy Conversion) [9].

OTEC works best when temperatures drop between the warmer upper layer of the ocean and colder deep ocean water is 20°C. In the Black Sea Region this ratio is lower and is equal to 15-16°C near the border coast between Russia and Georgia and 14.5-15°C near the Eastern coast of the Crimea. At such a temperature difference, there are several ways to use different types of technologies OTEC.

Closed-cycle technology. This technology uses liquid with low boiling point such as ammonia which rotates the turbine to produce the electric power. Warm surface seawater evaporated the liquid with low boiling point passing through thermal exchanger. The expanding steam turns the turbine located on the same shaft with electric generator and cold "deep seawater" condensates the spent steam back to liquid passing through the second thermal exchanger.

In 1999, the Natural Energy Laboratory commissioned a 250 kW pilot closed-cycle OTEC which is the largest operating power plant ever commissioned.

Open-cycle technology. The closed-cycle technology uses the warm surface water of tropical oceans to produce electricity. The technology includes the following: warm seawater goes to low pressure tank and boils. The expanding steam turns the low pressure turbine connected to the electric generator. Steam, which is almost distilled water, is con-

densed back to water again by cold deep ocean water.

Hybrid technology. This technology combines features of technologies of opened and closed cycles. In this hybrid system the warm seawater goes to vacuum tank where it is converted into steam like in the open-cycle technology. The water steam evaporated liquid with low boiling point the steam of which makes turbine to produce electric power.

Among the mentioned above technologies the advantage of OTEC open or hybrid technologies is clear, because there is production of electricity and fresh water. Theoretically, such technologies as OTEC allow to produce up to 2 MW of electric power and to obtain daily up to 4300 m³ of distilled water.

Thus, despite the fact that the Black Sea Region is not the tropical, the temperature drop of seawater is enough to use OTEC technologies designing HSEGC.

The salinity energy gradient of the Black Sea

The most promising methods to utilize the salinity energy gradient are based on use of osmotic pressure. Thence, they often talk about the energy of the salinity gradient, as osmosis energy [14].

The osmosis phenomenon is the following. If we take a semi permeable membrane and place it as a partition in a vessel between fresh and salt water (semi-permeable membrane - partition, which transmits fresh molecules in half of the vessel filled with salt water and salt molecules in the membrane does not miss half of the vessel with fresh water), the osmotic forces will deliver fresh water to salt water. Because of this the membrane is called semi permeable. Energy generated during this process appears in the form of high pressure that occurs in the part of the vessel with salt water. This is called the osmotic pressure (sometimes called osmotic waterfall). High pressure generated in the half of the vessel with salt water balances osmotic forces that displace fresh water molecules into salt water through semi permeable membrane.

It is necessary to have a source with lower concentration near the concentrated salt solution to obtain the osmotic energy. In the oceans such sources are the mouth of the rivers flowing into it. In the Black Sea this could be difference between salinity of deep (more than 1500 m) and upper layers (less than 50 m) of the sea that reaches values of 5-6 ‰. Such salinity drop can provide osmotic pressure of 0.3° MPa, which equal to the salt water rise up to 30 m height.

The salinity gradient energy, calculated from the osmotic pressure, is not subject to restrictions on the efficiency related to the Carnot cycle. This is one of the positive features of this type of energy. The problem is how best to convert this kind of energy into electricity.

Practical implementation of osmotic converters is possible in the nearest time. Thus, the largest Norwegian electricity concern Statkraft builds world's first osmotic power plant.

For the Black Sea the osmotic water rise to the height up to 30 m will allow to obtain up to 100 kW of electricity from the area of 1 m² during the operation of micro hydropower plant MHPP-100 K, for example. Thermal power obtained herewith from direct burn of hydrogen sulfide will be ~ 80 kW.

Wind waves and swell of the Black Sea

Wind waves and swell are common everywhere on open surfaces of water of small reservoirs as well in the vast oceans and seas.

Wind waves are called surface waves caused when the wind stops and the water is covered with swell the height of which is gradually disappears. The height of wave or swell is called a vertical distance that separates the cavity wave from its crest.

The first theory of surface waves was proposed by Mr. Gerstner, the Professor of Prague University, in 1802. However, it referred to swirling motion of water and did not determine the maximal possible height of the wave. Much later, Kelvin and Helmholtz independently performed works to explain the instability of surface water under wind influence [15, 16].

In these works it was shown that the wind waves occur due to instability development [17] which later was called "Kelvin-Helmholtz instability". Such waves can accumulate huge amounts of energy. In addition, these waves can be characterized by quite unusual behavior of their amplitudes: they can grow in size in a very short period of time in an explosive manner. [18].

It is necessary to determine basic parameters of waves and swells that are inherent to the Black Sea to evaluate the effectiveness of the wave power plant in the Black Sea Region.

First, about maximal values of the wave parameters that should be used when designing the wave power plants.

Thus, the biggest height of the Black Sea waves was 14 m and length – 200 m. The unique wave was recorded by stationary buoy near Gelendzhik coast in 2001. Its height was above the background height of waves of 2-2.5 m in 3.9 times, and the wave length of the order of height. Herewith, typical lifetime of such formation is only 4-5 sec (during this time the wave runs 20 m).

According to a special nine-point scale of the sea surface it is assumed that 1 point of excitement corresponds to a wave height of 25 cm, 2 points – 25-75 cm, 3 points – 75-125 cm etc.

Estimation of average power of the wave power plant is performed based on average wave parameters.

Average annual wave height in the Black Sea in 2003 was 90-100 cm based on wave station DATAWELL data.

Hence, in the North-Western Pacific Ocean the average wave height is about 1.25 m, the power of wave power plant is about 75 kW/m, the similar power obtained from the Black Sea waves with length not more than 20 m will be about 25 kW/m.

The advantage of this method to generate energy is that one should not look for special places with specifically favorable geographic conditions, unlike tidal stations, to use energy of wind waves and swell. Waves and swell are in any area. Besides, one should not construct big and costly dams to use energy of wind waves (and swell).

Solar energy of Crimea

Solar radiation flux that passes through an area of 1 m^2 and located perpendicular to the radiation flux at a distance of one astronomical unit from the Sun centre is 1367 W/m^2 (solar constant). Maximal flux of solar radiation at the sea level is 1020 W/m^2 due to absorption of the Earth's atmosphere. According to other reference data [19] the real solar radiation flux of Earth is about 1 kW per meter square. Note, however, that the daily average solar radiation flux per unit area is at least three times smaller (because of the change of day and night and change the angle of the sun above the horizon). This value is half as much during winter in temperate latitudes. Besides, the prospects to develop solar energy also reduce because of global dimming caused by human-induced decrease in solar radiation reaching the Earth's surface.

The mentioned above quantity of energy from unit of area defines possibilities of solar energy.

The main contribution to the density of the solar radiation flux falls on the visible and infrared radiation, as contribution to the solar radiation flux with wavelength bigger than $2.5 \mu\text{m}$ is negligible [19].

Herewith, the share of direct solar radiation is: from November till February is 20-40%; from March till October – 40-65%. On the Southern coast of the Crimea in the summer months – up to 65 – 70%.

The Crimea has also the biggest number of solar days during the year (290-300 days per year) that creates energetically favorable and cost-efficient situation for wide practical use of solar energy.

The main technological methods to use the solar energy are: photovoltaic conversion of solar energy into electrical energy or generating the heat energy for heating buildings (mirror hub, water heater, and thermal hub).

Below we will briefly discuss the specific application of these techniques.

Photovoltaic converter of solar energy. Present production of photocells is almost entirely based on silicon. Prospective application of silicon photovoltaic of solar energy is due to their environmental performance, significant PV service life (over 25 years at average rate of degradation of the photoelectric properties of the battery of 1% per year) and low maintenance costs. About 80% of all modules is produced using poly or single crystal silicon and the rest 20% use amorphous silicon.

Solar batteries from amorphous silicon have their own distinctive and unique features: high efficiency of solar energy conversion into electrical energy (up to 10%); low cost of the obtained electricity 10-12 cent/(kilowatt-hours); low weight per unit of capacity; resistance to mechanical damage (hit, bend and damage effect such as shot or shrapnel damage).

The capacity of photovoltaic converters of solar energy that are currently implemented in the Crimea by 2010 planned be up to 3.0 MW which will provide fuel saving up to 1.7 thousand tones of conventional fuel in independent power supply systems [20] (thermal value of conventional fuel is 29.33 MJ/kg).

Currently, there is an increasing capacity of solar power plants of Crimea. If 7.5 MW was in operation in the first half of 2011, then by the first half of 2012 there were more than 219 MW in operation that corresponds to 7% of the energy consumed in Autonomous Republic of Crimea [21].

Efficiency of photovoltaic converters could be estimated based on solar energy rates reaching ground in the Crimean region. The annual average daily solar radiation power in the Crimea (about 45°C of North Latitude) is estimated by value of 448.6 W/m^2 [22]. When conversion efficiency is 10-14%, then, 44.8-62.8 W of electric power could be obtained from 1 m^2 of photovoltaic converter. The power obtained from one square meter will allow to save 132 kg of conventional fuel per year.

Mirror converter. The operation principle of mirror converter is to focus solar rays, for example, using a concave mirror. Mirror is a main part of solar concentrator, a device where parallel solar rays are collected inside a concave mirror and are directed to the vessel with an effective absorber, for example, water. Mirrors used in machines are traditional, made of glass, or from polished aluminum.

Thermal power of mirror concentrator is determined by quantity of solar radiation, working absorption surface and its thermal efficiency (typically 20-50%). So, for example, with power flow of solar radiation of order of 850 W/m^2 the efficiency of thermal conversion is 30% and absorption area of order of 1.25 m^2 it is possible to obtain 320 W of thermal power or 260 W of electric power (with 80% efficiency of thermal power conversion into electric power in steam turbines).

Water heater. Another promising direction of solar power engineering is: direct irradiation of thermal energy for heating the buildings. Average annual density of solar energy flow in Ukraine is 180-250 W/m^2 (in the Crimea this ratio is higher in 1.5-2.5 times). This energy is enough to heat 100-120 liters of water from one square meter up to the temperature of $45\text{-}55^\circ\text{C}$.

Large number of sunny days in the Crimea (290-300) makes a perfect perspective to use solar collectors. Consid-

ering the predicted growth of prices on energy resources and environmental cleanliness of the obtained energy, the use of solar energy is very profitable. The proposed systems are more effective on sites the thermal supply and hot water supply of which is done from boiler houses that use liquid fuel (heating oil, fuel oil, diesel fuel). Maximum effect is achieved at the resort - recreational facilities, where the peak of hot water demand coincides with the maximum number of hours of sunshine per day. The proposed solar systems work reliably together with automated boiler houses due to the perfect system of automated control. Daily energy production at the 50th latitude is about 2kW-hour from the meter square. The temperature in the tank-battery reaches 60.....70 degrees. The facility efficiency is 40 %.

Thermal concentrator. Thermal concentrator – is the capacity of different geometry made of thermal isolating material, one side of it is covered by a single or double glass. A corrugated metal plate is installed inside the box for maximal absorption of sun rays. Heated air or water inside the box periodically or continuously are withdrawn by a fan or a pump.

Wind energy of the Crimea

Average annual, winds of Northern horizon dominate in the Crimea, they are of relatively small power (less than 6 m per second or 2 points, Beaufort).

The biggest speed during heavy storms is 20 meters per second and more, and at high altitudes above Yalta reaches up to 40 meters per second.

With the increase of height the wind speed also increases in 2-2.5 times, and, therefore, the value of generated energy. Thus, it is very important for Ukraine to develop wind energy conversion technologies at altitudes above 50-100 m with maximal efficiency and it can also increase the efficiency of HSEGC.

The use of a simple formula to calculate electricity generated by wind power plant created on the basis of low speed turbine, wind concentrator, output device for optimal modes of wind passing through the turbine, as well as new constructional materials, allow to increase efficiency up to 50-55% [23]. Thus, the quantity of the obtained electricity increases up to 8-15.6 times per unit of the swept surface by increasing the selection height of the wind energy, as well as increase of efficiency of wind turbine in 2-2.5 times.

Calculations show that use of high-altitude wind energy (100 m and higher) may increase energy balance of the Crimean Region up to 70 W per 1 m² of the swept surface.

Energy of deep heat flow of the Earth

In the Crimea it is possible to use energy of deep heat flow of the Earth. Typically, the temperature in mines increases on 25-30°C with every kilometer of depth. The background values of the deep heat flow are about 44 mW/m² in the most parts of Ukrainian shield, and in the areas of anomalies they reach values of 70-90 mW/m², and in some cases even up to 130 mW/m². Such areas are recorded in the Crimea as well. Economic estimations indicate cost effectiveness of geo-energy resources for heat supply with minimal geothermal gradient of 0.02-0.025 C/m, where C – heat capacity per unit volume of geological material equal to 2.5 mJ/m³ [24].

Energy of human waste

Energy power of constantly renewable municipal solid wastes (MSW) is particularly important for the Crimea considering uniquely high requirements to ecology in this region where in 2007 it was accumulated about 1 million tons [25] according to official data. The most pure way of processing this quantity of MSW is “Thermoselect” on which Japan already has 7 plants, the first of which was started in 1998. This technology does not pollute the atmosphere and does not form secondary wastes – everything is converted into synthesis gas and other useful products [25]. One tone of MSW produces 1090 kW/t of energy, part of it goes for internal needs of production, at 750 kW/t goes for external consumption. And besides, this technology can be used for processing of almost all types of toxic wastes (except for radioactive wastes) including up to 20% of liquid wastes which is very important for the Crimea.

Accumulation of energy

Currently, expensive pumped storage systems are constructed to compensate daily fluctuations of electricity consumption generated by nuclear power plants (NPPs), thermal power plants (TPPs), and they are often associated with flooding the effective areas and cause ecological imbalance. Some renewable energy sources (wind, solar) are exposed to daily and seasonal fluctuations. Such methods as electrolysis of water for hydrogen production are already used to accumulate energy of these sources. Therefore, there is still an important problem of development economically effective and environmentally sound technologies to accumulate energy of big power that is equal to power of pumped storage facilities.

SUMMARY

As it was noted earlier, the mentioned above complex extraction of the renewable energy sources from hydrogen sulfide area of the Black Sea and the Black Sea Region could not only increase significantly the energy balance of the Crimea but also contribute to social and economic development of the region.

This is confirmed by the Fig. 10 and the bar chart in it that describes absolute values of specific contribution of

each type of renewable energy sources of the Crimean region.

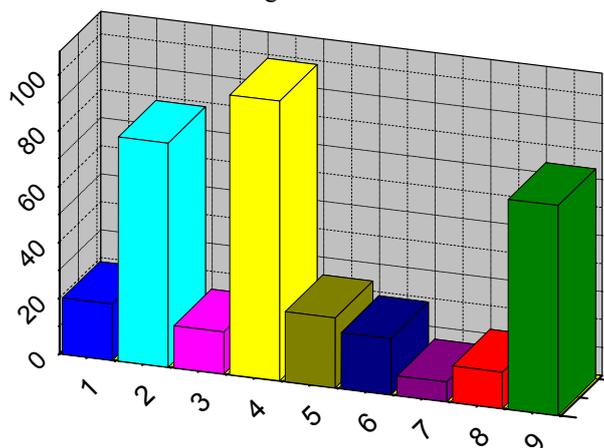


Fig. 10. Bar chart of specific contribution of renewable energy sources of the Crimean region

1 – Hydraulic power, kW/m²; 2 – Energy of hydrogen sulfide, kW/m²; 3 – OTEC, kW/m²; 4 – Osmosis energy, kW/m²; 5 – Energy of waves, kW/m; 6 – Solar energy×100, kW/m²; 7 – Wind energy×100, kW/m²; 8 – Energy of thermal flow×100, kW/m²; 9 – Energy of MSW reprocessing×100, kW/kg

From the bar chart it is clear that specific hydro power resources of hydrogen sulfide area of the Black Sea (hydro energy power production and osmosis) could provide essential contribution into traditional energy balance of the Crimean region along with the use of hydrogen sulfide, OTEC and wave technology, as well as reprocessing of MSW in industrious scale. Other types of RES have lower specific energy rates and could be recommended for industrious use in the form of separate power generating plants (solar, wind or converting the heat of the Earth) as well as for individual use in private sector.

Summarizing all mentioned above, it could be stated that complex use of environmental renewable energy sources can solve a problem on transition to a clean alternative energy at the present level of technological development. On the example of the Crimea and the Black Sea it is shown that use of RES can transform the Near Black Sea Region from energy consuming into energy producing region.

This, of course, will require considerable investments but their payback and environmental feasibility are obvious.

Analysis of similar complex use of renewable energy sources is necessary to perform in every region of Ukraine and on its basis to develop programs of real progress in this area. Using tautology, it could be stated that there is no alternative way. And this problem is not of an uncertain future, and of the pressing present.

CONCLUSIONS

Thus, the performed study showed that hydrogen sulfide in the Black Sea could legitimately be included into the alternative energy balance of Ukraine.

Currently, there is an urgent need for extraction and utilization of hydrogen sulfide of the Black Sea.

Increase of hydrogen sulfide in the Black Sea due to sulfate reduction process in water column is a dominant and is estimated to be 87-96% from its total inflow with 4-20% of hydrogen sulfide comes ready-made mainly from the rock bottom on tectonic faults and groundwater from oil reservoirs.

Total storage of hydrogen sulfide in the Black Sea is 28-63 billion tones and its annual increase is not less than 4-9 million tones.

Average quantity of hydrogen sulfide dissolved in the Black Sea per one liter of seawater is: 1.2 mg – at depth of 200 m, 2.34 – at depth of 300 m, 8.84 – at depth of 1000 m and 9.6 and more – at depth of about 2000 m and in 1000 times less that from the saturation concentration.

Extraction and processing of hydrogen sulfide can provide significant increase of energy balance of Ukraine (up to 10% of electricity generated by Ukrainian NPPs).

Technology of fountain lifts could be used to lift hydrogen sulfide from the deep layers of the Black sea water and its extraction; this technology is well designed and is widely used for development of oil fields. Active element during water extraction is hydrogen sulfide dissolved in it. Effectiveness of the lift operation increases with the increase of the depth of hydrogen sulfide water sampling, and also with increase of thickness of sea surface layer without hydrogen sulfide. Calculations and simulation experiments show that pressure drop of the fountain lift could reach 0.15 MPa which corresponds to the lift of hydrogen sulfide water on the height up to 15 m (on condition of complete extraction of hydrogen sulfide from the seawater).

The mechanism of energy efficient method to extract hydrogen sulfide from deep depth Black Sea water was proposed to implement technologies of fountain lifts. Its efficiency is determined by the area of the pipeline cross-section, depth of its dipping into the sea and the height of hydrogen sulfide water lift in the pipeline.

The capacity of this plant is not less than 20 l/min of hydrogen sulfide per 1 dm² on condition that 50% of hydro-

gen sulfide is extracted from the seawater and delivered to the sea surface.

Specific hydro energy power resources of hydrogen sulfide area of the Black Sea (hydro energy power and osmosis) along with could provide essential contribution into traditional energy balance of the Crimean region along with the use of hydrogen sulfide, OTEC and wave technology, as well as reprocessing of MSW in industrious scale.

REFERENCES

1. European Commission. Energy & Transport: Report 2000-2004 Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 2004 — 92 pp.
2. www.ccssu.crimea.ua/crimea/ac/6/2_1.html
3. Bortz B.V., Neklyudov I.M., Polevich O.V., Shyliaev B.A., Tkachenko V.I. Alternative hydrogen sulfide energy power of the Black Sea. Status, problems, perspectives. Part I. // ISJAEE. – 2006. – No. 12 (44). - P. 23-30.
4. Alforova A.V., Borts B.V., Tkachenko V.I. Virtual Nitrogen Dioxide Molecule Dissociation in External Electromagnetic Fields // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2011. – No.979. - Issue 4/52/. - P. 49-58.
5. Neklyudov I.M., Azarenkov N.A., Bortz B.V., Polevich O.V., Tkachenko V.I. Alternative hydrogen sulfide energy power of the Black Sea. Energetically efficient methods to extract hydrogen sulfide water from the given depth. Part II. // ISJAEE. – 2007. - No. 9 (53). - P. 35-41.
6. Bortz B.V., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Stationary status and varying dynamics of gas bubbles in liquid medium with decrease of external pressure // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2011. - No.946. – Issue 1/49/. - P.81-89.
7. Bortz B.V., Kazarinov Yu.G., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Experimental study of dynamics of air bubbles in water with fast decompression // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2012. - No. 991. - Issue 1/53/. - P. 95-101.
8. Necklyudov I.M., Bortz B.V., Polevich O.V., Tkachenko V.I. Hydrogen power engineering based on hydrogen sulfide resources of the Black Sea / V international conference “Hydrogen economics and hydrogen treatment on materials” VOM-2007, Donetsk, May 21-25, 2007. – Vol. 1. – P. 149-153.
9. Vershinckiy N.V. Ocean energy. - M.: Science, 1986. – 152 p.
10. Bortz B.V., Gorlitzkiy B.A., Neklyudov I.M., Tkachenko V.I. Alternative hydrogen sulfide power engineering of the Black Sea. Alternative power engineering of hydrogen sulfide area of the Black Sea and the Black Sea Region. Part III // ISJAEE. – 2009. – No.4. – P.12-19.
11. Aleksandrov A.N., Bortz B.V., Kasimov A.M., Tkachenko V.I. Hydrogen sulfide power engineering pf the Black Sea – ecological problems and perspectives / Col. Of scientific articles of IV International scientific and practical conference “Environmental safety: problems and ways of solution”, September 8-12, 2008, Alushta, AR Crimea. – Vol. 2. – P.3-6.
12. Bondarenko G.N., Kolyabina I.L., Marinich O.V. Chemical forms of hydrogen sulfide in deep waters of the Black Sea / Col. Of scientific articles of IV International scientific and practical conference “Environmental safety: problems and ways of solution”, September 8-12, 2008, Alushta, AR Crimea. – Vol. 2. – P. 346-350.
13. Neklyudov I.M., Bortz B.V., Polevich O.V., Tkachenko V.I., Shilyaev B.A. Hydrogen power engineering based on hydrogen sulfide resources of the Black Sea / V international conference “Hydrogen economics and hydrogen treatment of materials” VOM-2007, Donetsk, May 21-25. – 2007. – P.149-153.
14. Encyclopedia of Physics. Vol.3 / Chief editor A.M. Prokhorov. – M.: Big Russian Encyclopedia, 672 p.
15. Kelwin W. On stationary waves in flowing water // Phil. Mag. – 1871. – Ser. 4. – Vol.42. – P.362.
16. Helmholtz G. Die Energie der Wogen und des Windes // Will. Abhandl. Leipzig. – 1895. – Vol.3. – P.332-355.
17. Lumb G. Hydro dynamics. – M.: OGIZ, State technical edition, 1947. – 928 p.
18. Gushchin V.V., Moiseev S.S., Pungin V.G., Tkachenko V.I. Dimensional properties and self-explosive processes in stratified shear flows // DAS USSR. – 1985. – Vol.285. – No.1. – P.65.
19. Twaidell J., Wair A. Renewable energy sources. – M.: Energoatomizdat, 1990. – 392 p.
20. Shulman R.F. Energy saving encyclopedia of biofuel technologies and alternative energy sources. – Kiev, 2006. – 560p.
21. <http://www.profi-forex.org/news/entry1008134373.html>
22. Kharchenko N.V. Individual solar facilities. – M.: Energoatomizdat, 1991. – 208p.
23. Tkachenko V.I. High effective wind turbine with concentrator on base of the latest materials and technologies // Workshop of CNCP, Moscow, 16 - 20 September, 2007. – P.16.
24. Gordienko I.V., Zagorodnyaya O.V. Deep thermal flow and geo-energy resources of Ukraine – Energy of Earth, its geological and ecological demonstrations, scientific and practical use. – K.: Editorial and polygraph center “Kiev University”, 2006.
25. Gorlitzkii B.A., Tkachenko V.I. Alternative renewable energy of the Black Sea and the Near Black Sea Region // Col. Of scientific articles, IV international scientific and practical conference “Environmental safety: problems and ways of solution”, September 08-12, 2008, Alushta, AR Crimea. – Vol. 2. – P. 358-364.

PACS: 52.50.Dg, 52.77.Dq

PHYSICAL ASPECTS OF VACUUM-ARC COATING DEPOSITION**I.I. Aksenov, D.S. Aksyonov***National Science Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology"**1 Akademicheskaya str., Kharkiv, 61108, Ukraine**e-mail: iaksenov.nsceipt@gmail.com*

Received September 4, 2014

The brief analytical review of literary data concerning the processes which are a physical basis of vacuum-arc coating deposition technology is presented. The phenomena responsible for formation of films by condensation of substance from plasma of arc discharge in vacuum or in a gaseous ambience of low pressure are described. Interaction of metal plasma with a gas target, a substrate and other surfaces of working chamber, the processes of nucleation and condensate growth, influence of energetic parameters of a deposition process (kinetic and potential energy of metal ions, activation degree and sort of the gas) on properties of condensates and near-surface layers of the substrate are described.

KEYWORDS: vacuum arc, plasma, condensation, bias potential, ions, sputtering, coating, internal stresses

ФІЗИЧНІ АСПЕКТИ ВАКУУМНО-ДУГОВОГО ОСАДЖЕННЯ ПОКРИТТІВ**І.І. Аксьонов, Д.С. Аксьонов***Національний науковий центр "Харківський фізико-технічний інститут"**вул. Академічна 1, Харків 61108, Україна*

Наведено короткий аналітичний огляд літературних даних щодо процесів, які становлять фізичну основу технології вакуумно-дугового осадження покриттів. Описані явища, що відповідають за формування плівок конденсацією речовини з плазми дугового розряду у вакуумі чи в газовому середовищі низького тиску. Розглянуто взаємодію металевої плазми з газовою мішенню, з підкладкою й з поверхнею інших елементів робочої камери, процеси зародкоутворення і росту конденсату, вплив енергетичних параметрів процесу осадження (кінетичної й потенціальної енергій іонів металу, ступеня активації й роду газу) на властивості конденсату й при поверхневих шарів підкладки.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: вакуумна дуга, плазма, конденсація, потенціал зміщення, іони, розпилення, покриття, внутрішні напруженості

ФИЗИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ВАКУУМНО-ДУГОВОГО ОСАЖДЕНИЯ ПОКРЫТИЙ**И.И. Аксёнов, Д.С. Аксёнов***Национальный Научный Центр "Харьковский физико-технический институт"**ул. Академическая 1, Харьков 61108, Украина*

Приведен краткий аналитический обзор литературных данных о процессах, составляющих физическую основу технологии вакуумно-дугового осаждения покрытий. Описаны явления, ответственные за формирование плёнок конденсацией вещества из плазмы дугового разряда в вакууме или в газовой среде низкого давления. Рассмотрены взаимодействие металлической плазмы с газовой мишенью, подложкой и другими поверхностями рабочей камеры, процессы зародышеобразования и роста конденсата, влияние энергетических параметров процесса осаждения (кинетической и потенциальной энергии ионов металла, степени активации и рода газа) на свойства конденсатов и приповерхностных слоёв подложки.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: вакуумная дуга, плазма, конденсація, потенциал смещения, ионы, распыление, покрытие, внутренние напряжения

В процессе формирования поверхностных плёнок конденсата осаждением металла из плазмы, генерируемой вакуумной дугой, реализуется так называемый режим высокоэнергетической конденсации. Термин «высокоэнергетическая конденсация (energetic condensation)» впервые использован Коллигоном [1, 2]. Этим словосочетанием обозначается процесс осаждения конденсата, когда значительная часть конденсирующихся (формирующихся плёнку) частиц обладает гипертепловой энергией. В большинстве случаев она составляет примерно 10 эВ и больше. Для высокоэнергетической конденсации характерен ряд поверхностных и подповерхностных процессов, таких как десорбция адсорбированных молекул, повышение подвижности мигрирующих по поверхностных атомов, торможение и остановка падающих ионов под поверхностью.

Рассмотрим вначале рост и зародышеобразование для случая обычного (низкоэнергетического) процесса физического осаждения из паровой фазы (physical vapor deposition – PVD) [3]. В зависимости от того, является ли связь между подобными друг другу адатомами сильнее, чем между адатомом и атомом подложки, или слабее, можно различать три основных режима роста конденсата: (i) трёхмерный или островковый рост, (ii) двумерный или послойный рост, и (iii) смешанный режим, который начинается с двумерного, переходящего затем, после образования одного или более монослоёв, в островковый режим. В случае двумерного роста конденсирующиеся частицы обладают сродством к атомам подложки: они связываются с подложкой более сильно, чем между собой. В противном случае адатомы выстраиваются в трёхмерные островки, растущие во

всех направлениях, в том числе – и в направлении, нормальном к поверхности. Растущие островки сливаются, соприкасаясь друг с другом, и, в конечном счёте, образуют сплошную плёнку. Наконец, в случае смешанного режима разница между интенсивностями связей одинаковых атомов и неодинаковых атомов незначительная. Система связей изменяется как только поверхностные атомы покрываются и захороняются одним или двумя монослоями, после чего начинается формирование островков. Для объяснения этого необходимо строго учитывать энергетическое состояние всей системы, включающее вклад энергии деформации, обусловленной рассогласованностью в кристаллической решётке и свободной поверхностной энергией [3–7].

Большой интерес представляет низкоэнергетическая область рассматриваемого типа конденсации, т.е., режим, в котором конденсирующиеся частицы обладают энергией, достаточной для интенсификации поверхностной подвижности, но не достаточной для повреждения растущего покрытия. Здесь кинетическая энергия падающих частиц составляет 5–25 эВ.

Чаще, однако, высокоэнергетическая конденсация рассматривается как процесс, в котором энергии более высокие, так что такую конденсацию можно считать процессом, в котором энергия плёнообразующих ионов или атомов превышает энергию сдвига E_d , что позволяет им проникнуть в подповерхностную область. Рост пленки, поэтому, происходит скорее под поверхностью, нежели на поверхности. Формирование конденсата вследствие такой субимплантации [8–10] ассоциируется с плотной и твёрдой плёнкой, что свидетельствует о наличии высокой внутренней напряжённости. В результате перемешивания материала плёнки с подложкой и формирования химических связей такие плёнки обладают хорошей адгезией к подложке, если только внутренние напряжения не достигают чрезмерно высокого уровня, при котором происходит отслаивание плёнки. Субимплантационный рост плёнки ещё не означает, что поверхностными процессами можно пренебречь. Напротив, высокоэнергетическая конденсация при субимплантационных энергиях вызывает уход атомов с поверхности (десорбция, распыление), а также снабжает поверхностные атомы энергией, тем самым стимулируя их поверхностную миграцию в термодинамически более выгодные места, что способствует минимизации свободной энергии системы.

Целью настоящей работы является анализ и систематизация имеющихся в настоящее время литературных данных о физике процессов, составляющих основу получивших широкое распространение технологий вакуумно-дугового осаждения покрытий.

СУБИМПЛАНТАЦИОННЫЙ РОСТ ПЛЁНОК КОНДЕНСАТА

Как уже отмечалось выше, осуществление режима высокоэнергетической конденсации обычно происходит в случае осаждения покрытий из металлической плазмы, генерируемой вакуумно-дуговым источником.

Ускоряемые в процессе электрон–ионного взаимодействия, а также под воздействием градиента давления, неподалёку от катодного пятна ионы достигают сверхзвуковой скорости. Эту изначальную, «естественную», скорость обозначим как v_{i0} . Тогда соответствующая кинетическая энергия иона в вакуумной дуге катодного типа равна

$$E_{i0} = m_i v_{i0}^2 / 2. \quad (1)$$

Пока ион движется к подложке, эта энергия может измениться вследствие столкновения иона с нейтралами или в связи с другими видами его взаимодействия с компонентами потока плазмы. Если на подложку подан отрицательный (относительно плазмы) потенциал – отрицательное напряжение смещения, положительный ион перед соударением с подложкой в приповерхностном слое получит дополнительное ускорение. Зарядовое число Z , которое для многих металлов равно 2 или 3, представляет собой множитель для кинетической энергии, определяемой падением напряжения V_s в приповерхностном слое у подложки. Суммарная кинетическая энергия иона в момент соударения с подложкой может быть записана как

$$E_{i,kin} = E_{i0} + ZeV_s, \quad (2)$$

где e – элементарный заряд. Предполагается, что в приповерхностном слое не было столкновений. Некоторую небольшую добавочную кинетическую энергию E_{ic} ион приобретает под воздействием наведенного заряда (см. ниже).

Ионы вакуумной дуги катодного типа обладают не только кинетической, но и потенциальной энергией, которая состоит из энергии когезии E_c , кумулятивной энергии ионизации E_{ion} и энергии возбуждения связанных электронов E_{exc} , если эти электроны находятся в возбуждённом состоянии. Выражение для потенциальной энергии может быть записано как

$$E_{pot}(Z) = E_c + E_{ion} + E_{exc}. \quad (3)$$

Вклад энергии возбуждения относительно невелик и поэтому из дальнейших обсуждений может быть исключён.

Энергия ионизации очень значительна, особенно для многозарядных ионов. Энергия ионизации E_Z – это энергия, требующаяся для того, чтобы удалить электроны из иона, находящегося в зарядовом состоянии Z и превратить его в ион с кратностью ионизации $Z+1$ [11, 12]. Поэтому, рассчитывая кумулятивную энергию ионизации, которая должна быть передана плёнке, например, трёхзарядным ионом, следует сложить энергии ионизации всех трёх ступеней ионизации. (Величины кумулятивной энергии ионизации и энергии когезии приведены в таблицах В.4 и В.8, соответственно, в монографии Андерса [2]). Кумулятивная энергия ионизации рассчитывалась по формуле

$$E_{ion} = E_{Z+}^{sum} = \sum_{Z'=0}^{Z-1} E_{Z'} \quad (4)$$

Например, E_{2+}^{sum} представляет собой кумулятивную энергию ионизации, которую передаёт подложке двухзарядный ион.

Чтобы лучше понять суть высокоэнергетичной конденсации, необходимо более детально рассмотреть физические явления, происходящие, когда ион падает на поверхность подложки. Когда ион приближается к металлической подложке на расстояние в несколько нанометров, в подложке наводится заряд противоположной полярности (рис. 1), который воздействует на ион с силой

$$F = (eZ)^2 / (4\pi\epsilon_0 (2d)^2), \quad (5)$$

где d – расстояние между ионом и поверхностью подложки. Эта сила вызывает ускорение иона по направлению к подложке, что обеспечивает дополнительный толчок иону, слегка повышая его кинетическую энергию. С сокращением расстояния d электрическое поле иона снижает потенциальный барьер, который в обычных условиях удерживает электроны от выхода в вакуум. Электроны металла вблизи уровня Ферми могут осуществить резонансный переход на возбуждённый уровень падающего иона, если потенциальный барьер между металлом и ионом достигает уровня Ферми, т.е. когда переход совершается в соответствии с классической ("сквозь барьер") моделью [13]. Переход электрона осуществляется на критическом расстоянии

$$d_c(Z) \approx a_B E_H / e\phi (8Z + 2)^{1/2}, \quad (6)$$

где a_B – радиус Бора, E_H – энергия ионизации водорода, $e\phi$ – работа выхода [13].

После перехода заряд иона и наведенный заряд уменьшаются, а высота барьера увеличивается. В случае многозарядного иона возникает более короткое критическое расстояние, на котором становится разрешённым переход второго электрона. Заряд многозарядных ионов уменьшается скачкообразно, ступенчато. В ступенчатой аппроксимации выражение для кинетической энергии за счёт наведенного заряда имеет вид [13]

$$E_{ic} = \frac{e\phi}{2} \sum_{i=0}^{Z-1} \frac{2(Z-i)-1}{\sqrt{8(Z-i)+2}}. \quad (7)$$

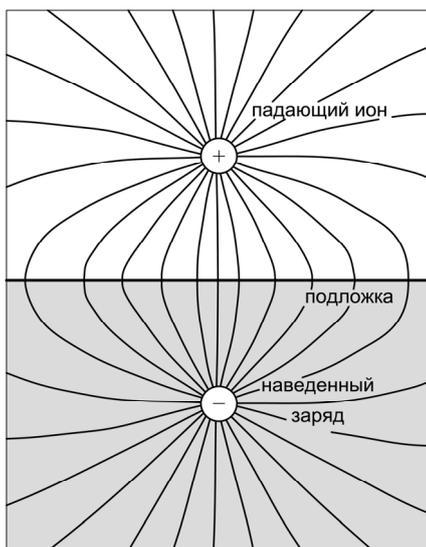


Рис. 1. Схема электрических полей, ускоряющих ион в момент перед его соударением с поверхностью конденсации [2]

Ситуация выглядит иначе, если ион налетает на поверхность изолятора, поскольку в этом случае в зоне проводимости нет электронов. Можно считать, что эффективный наведенный заряд теперь равен $Z_{eff} = \xi Z$, где ξ функция отклика диэлектрика [11] при $0 < \xi < 1$. Добавка энергии определяется наведенной энергией, приобретенной на расстоянии d_{c1} захвата первого электрона:

$$E_{ic,insul} = \chi(d_{c1}) \frac{e^2 Z^2}{4d_{c1}}. \quad (8)$$

После захвата первого электрона поверхность локально заряжается положительно. Ускорение, вызываемое наведенным зарядом, частично компенсируется торможением вновь возникшим поверхностным зарядом, и, таким образом, дальнейшего прибавления энергии иона не происходит [11].

При захвате электрона, энергия может быть высвобождена в виде излучения или путём испускания Оже электрона. Статистически, половина

радиационной энергии освещает подложку и растущую плёнку. Захваченный электрон находится в возбуждённом состоянии, поскольку время между захватом и соударением с поверхностью недостаточно для перехода в основное состояние, так что теперь мы имеем дело с "неполноценным атомом" (hollow atom) [15]. Время между захватом электрона и соударением иона с поверхностью составляет примерно несколько десятков фемтосекунд.

Когда ион (теперь уже неполноценный атом) попадает на поверхность, глубина его внедрения определяется его моментом или кинетической энергией. При скорости потерь кинетической энергии порядка 100 эВ/нм ионы проникают вглубь тела подложки на несколько монослоёв (субимплантация). Кинетическая энергия может быть связана с короткими каскадами столкновения и смещения атомов. Каждый смещённый атом занимает новое местоположение, совершив относительно него колебания большой амплитуды – процесс, далёкий от термодинамического равновесия. Атомы, вовлечённые в каскады столкновений, занимают собой объём высокотемпературного материала атомарного масштаба. Теплопроводность материала ведёт к быстрому рассеянию тепловой энергии указанного объёма. В связи с неравновесной природой процесса высокоэнергетического осаждения ионов следует быть осмотрительным, употребляя термины "теплота" и "температура".

Высвобождение потенциальной энергии и её влияние на свойства осаждаемых покрытий менее изучено, и его часто пренебрегают в связи с тем, что большинство исследований касалось конденсации нейтральных паров или *не многозарядных* ионов. В случае вакуумно-дуговой плазмы потенциальная энергия имеет большое значение. Энергия ионизации высвобождается в два этапа. На первом этапе высвобождение происходит на подходе к поверхности посредством излучения и Оже процессов, а второй этап происходит в твёрдом теле. Часть потенциальной энергии переходит в твёрдое тело посредством электронного возбуждения [16]. Электрон-фононная связь ведёт к локальному нагреву кристаллической структуры; масштаб времени необходимого для достижения равновесия между электронной температурой и температурой решётки составляет около 1 пикосекунды [17]. Высокая потенциальная энергия падающего иона может привести к эмиссии поверхностных атомов (потенциальное распыление [15]). В случае диэлектрических поверхностей, положительный поверхностный заряд притягивает электроны из плазмы. Можно считать, что энергия ионизации поглощена твёрдым телом, если на поверхность поступил электрон, компенсирующий положительный заряд. Когезионная энергия проявляется (превращается в теплоту), когда поступивший на поверхность ион становится атомом плёнки, т.е. его электрон вступает в связь с соседними атомами. В высокоэнергетическом осаждении вакуумно-дуговой плазмы каждый ион несёт в себе значительную кинетическую и потенциальную энергию, которые обращаются в так называемый нагрев атомного масштаба (atomic scale heating, ASH [2]). Кинетическая энергия и потенциальная энергия обычно превышают по величине энергию поверхностной связи и энергию активации, обеспечивающую поверхностную диффузию, а потому можно ожидать, что обе эти энергии, кинетическая и потенциальная, оказывают значительное влияние на эволюционные процессы в плёнке и, в конечном счёте, на её свойства. Суммарная энергия, которую Z -зарядный ион передаёт подложке, можно определить, добавив кинетическую и потенциальную энергии за вычетом энергии, требующейся для извлечения Z электронов из подложки, так что

$$E_{total}(Z) = E_{kin,0} + ZeV_{sheath} + E_{ic} + E_c + E_{exc} + \sum_{Z'=0}^{Z-1} E_{Z'} - Ze\phi. \quad (9)$$

В работе [18] показано, что ASH может заменить обычный нагрев и, таким образом, интенсификацией поверхностной миграции при интегрально холодной основе (подложке) обусловить формирование плотной плёнки. Конечно, ASH, в конечном счёте, ведёт к повышению температуры всей подложки вместе с растущей плёнкой. Если подложка снабжена подложкодержателем, обеспечивающим теплоотвод за счёт водяного охлаждения, то подложка может сохранять первоначальную температуру, например, комнатную.

Даже в отсутствие принудительного потенциала смещения кинетическая энергия иона достаточно велика для того, чтобы ион (после нейтрализации – атом) был внедрён в поверхность, т.е. в самый верхний монослой конденсата, что и обуславливает его уплотнение и появление в нём высоких напряжений сжатия.

Соударение с конденсатом иона с энергией в диапазоне 10 эВ – 10 кэВ ведёт к субимплантационным процессам далеко от термодинамического равновесия, в результате чего в течение временного интервала от фемтосекунд до пикосекунд могут формироваться метастабильные аморфные или нанокристаллические фазы.

Эмиссия вторичных электронов

В процессе высокоэнергетической конденсации может возникнуть эмиссия вторичных электронов (ЭВЭ). Появление ЭВЭ может иметь достаточно заметное влияние на процессы, происходящие в плазме в непосредственной близости к подложке. Различают кинетическую эмиссию (КЭ) и потенциальную эмиссию (ПЭ), которые основаны на том, какой вид энергии ответствен за процесс эмиссии. Кинетическая эмиссия значительна в том случае, когда кинетическая энергия падающего иона превышает примерно 1 кэВ и становится доминирующей при нескольких кэВ. Если, предположим, мы имеем дело с плазмой, средняя

зарядность ионов которой составляет 2, то при любом потенциале смещения, превышающем 500 В, будет иметь место кинетическая эмиссия электронов с выходом не менее 0,1 (выход определяется как среднее количество вторичных частиц, в данном случае – электронов, эмитируемых на одну падающую первичную частицу). При очень больших энергиях, определяемых высокими потенциалами смещения в режимах травления и имплантации ионов погружением в плазму (ПИИ – plasma immersion ion implantation), выход кинетической эмиссии электронов может достигать больших величин. На рис. 2 в качестве примера приведены кривые зависимости коэффициента вторичной электронной эмиссии от энергии ионов циркония различной зарядности, бомбардирующих алюминиевую подложку. Рис. 3 иллюстрирует влияние средней зарядности ионов различных металлов, бомбардирующих подложку из нержавеющей стали [19].

При более низких значениях кинетической энергии выход кинетической эмиссии электронов пренебрежимо мал, и доминирующей является потенциальная эмиссия, хотя по абсолютному значению она также невелика. Выход ПЭ незначительный и обычно гораздо меньше единицы.

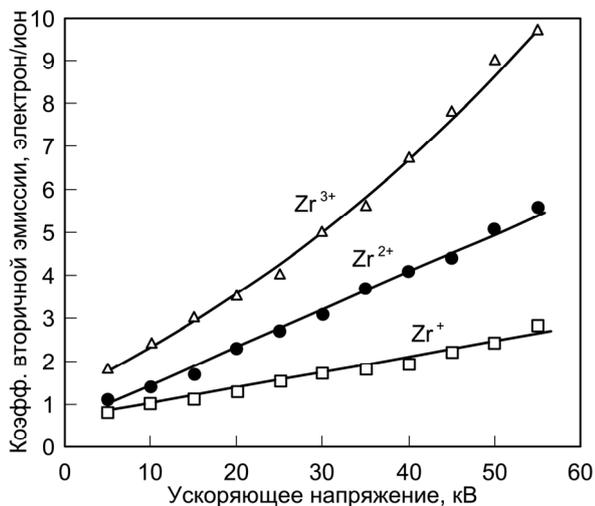


Рис. 2. Выход вторичных электронов из алюминиевой мишени при бомбардировке её одно-, двух- и трёхзарядными ионами циркония в зависимости от ускоряющего напряжения на подложке [2,19]

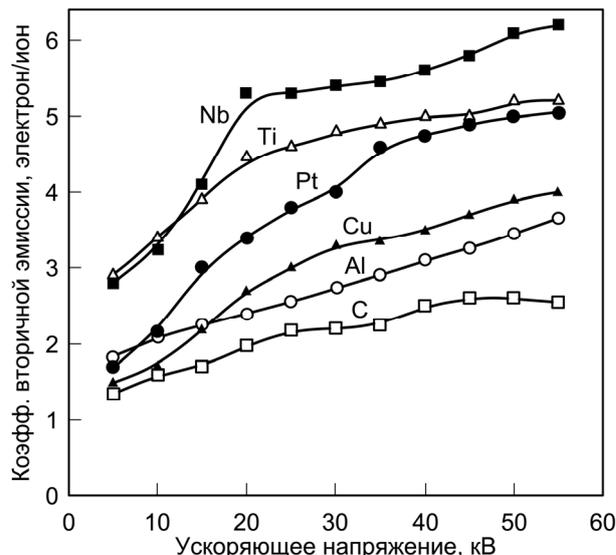


Рис. 3. Коэффициент вторичной эмиссии электронов для мишени из нержавеющей стали, усреднённый по распределению зарядности ионов разных металлов, в функции ускоряющего напряжения [2,19]

Как только произошла эмиссия вторичных электронов, они попадают в электрическое поле приповерхностного слоя, которое ускоряло (положительные) ионы, а теперь оно ускоряет (отрицательные) электроны в противоположном направлении. Эти электроны могут взаимодействовать с плазмой, особенно с более холодными электронами плазмы, а также с остаточным газом, если таковой присутствует, тем самым повышая плотность плазмы. Эта добавочная ионизация может быть значительной или нет в зависимости от длины свободного пробега, которая является функцией энергии электрона (зависящей от падения напряжения на приповерхностном слое), плотности плазменной "мишени" и сечения взаимодействия с частицами мишени. Во многих случаях дополнительная ионизация незначительна, и потому целесообразно перейти к рассмотрению других вторичных частиц – атомов, поступающих с поверхности подложки.

САМОРАСПЫЛЕНИЕ И "НЕПРИЛИПАНИЕ"

Когда высокоэнергетичный ион налетает на подложку, он обретает состояние покоя либо на поверхности, либо под поверхностью, внося таким образом вклад в процесс осаждения конденсата. Однако не все ионы входят в состав подложки или конденсата. В зависимости от энергии и угла падения иона, от материала подложки некоторые ионы могут "отскочить" в виде нейтрализованных атомов, способствуя таким образом плотности облака нейтральных атомов, а не росту плёнки. Для поступающих к поверхности энергетических ионов можно ввести показатель "вероятность прилипания". К тому же, следует отметить, что при вероятности прилипания меньшей единицы происходит повышение плотности нейтралов в плазме, что ведёт к снижению зарядности многозарядных ионов.

Другой механизм генерирования заключается в следующем. Поступающий на подложку атом входит в её состав, но каскад соударений под поверхностью ведёт к выталкиванию одного (или более) поверхностных атомов. Этот процесс называют распылением. В том случае, когда падающий ион и распылённый атом являются частицами одного и того же материала, процесс называют самораспылением. Понятно, что самораспыление снижает скорость роста покрытия, а в случае, если выход самораспыления превышает единицу, роста плёнки не происходит.

По выходу самораспыления при конденсации вакуумно-дуговой плазмы для низких энергий, т.е. в

отсутствие отрицательного смещения на подложке или при малых величинах смещения, имеется очень небольшой объём экспериментальных данных. Самораспыление будет, конечно, зависеть от особенностей рассматриваемого материала, и можно ожидать, что самораспыление особенно существенно для материалов с тяжёлыми ионами и малой энергией поверхностной связи (Zr, Au). Установлено, что для таких материалов толщина покрытия сильно зависит от величины отрицательного смещения на подложке, так что данные по толщине конденсата могут быть преобразованы в величины выхода самораспыления. В случае золота на образцах не было обнаружено следов покрытия при смещении свыше -50 В.

На рис. 4 и 5 показаны примеры зависимостей выхода самораспыления и вероятности прилипания от угла падения иона. При падении иона по нормали к поверхности коэффициент прилипания близок к единице для всех металлов, а выход самораспыления при 100 эВ, по данным [20] и [21], составлял 0,2 для алюминия, 0,3 для никеля и 0,5 для меди. При нормальном падении иона коэффициент прилипания почти равен единице, потому что кинетическая энергия ионов вакуумно-дуговой плазмы достаточна для сдвига приповерхностных атомов и останова в подповерхностной зоне. При наклонном падении проникновение иона в подложку (или в осаждаемый конденсат) сильно затруднено: ион, взаимодействуя с поверхностными атомами, нейтрализуется, поглощая электроны в количестве, соответствующем его первоначальной зарядности, и теряя при этом энергию и момент. В результате, в плазме появляется нейтральный атом с энергией более низкой по сравнению с энергией иона перед соударением.

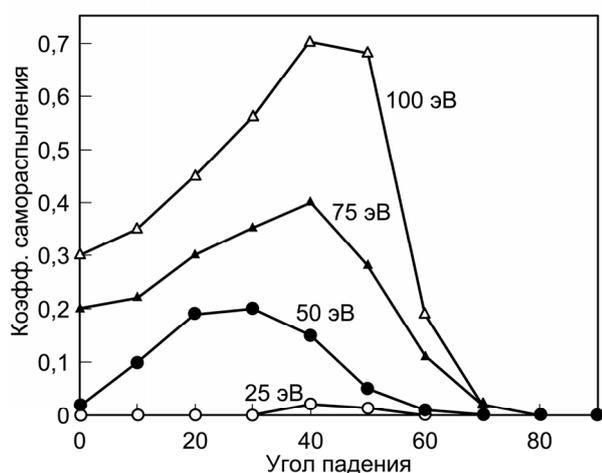


Рис. 4. Коэффициент самораспыления в функции угла падения (относительно нормали к поверхности). Никель [2,42]

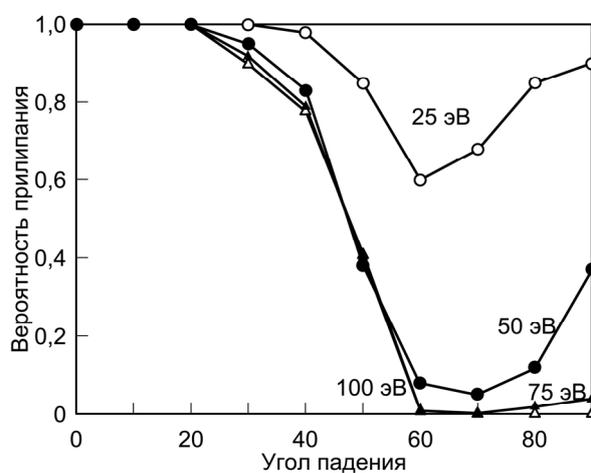


Рис. 5. Вероятность прилипания в функции угла падения (относительно нормали к поверхности). Никель [2,42]

Другое отклонение от общего правила (повышение вероятности прилипания по мере приближения угла падения к прямому углу) возникает, когда ион очень лёгкого элемента ударяется о подложку, решётка которой состоит из тяжёлых атомов с высокой энергией смещения. Лёгкие атомы не очень эффективны для сдвига этих атомов и вероятность обратного рассеяния существует даже при нормальном падении. Например, расчёты показывают, что вероятность обратного рассеяния ионов алюминия, соударяющихся с поверхностью вольфрама, составляет около 50% в диапазоне энергий 30 – 100 эВ.

Формирование нейтралов вследствие распыления и "неприлипания" ведёт к повышению концентрации этих нейтралов над поверхностью. Действительно, над поверхностью, на которую воздействуют потоками вакуумно-дуговой плазмы, легко наблюдать усиление линий таких нейтралов.

СВОЙСТВА ПЛЁНОК, ПОЛУЧЕННЫХ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ КОНДЕНСАЦИЕЙ Диаграммы структурных зон

Осаждение покрытий (плёнок) путём высокоэнергетической конденсации ионов из плазмы вакуумной дуги может быть осуществлено в широком диапазоне температур подложки. Во многих случаях повышенная температура подложки крайне желательна для того, чтобы контролировать (снижать) введение в конденсат водорода из водяных паров, а также способствовать формированию необходимых кристаллической фазы и ориентации. Осаждение при комнатной температуре (или близкой к ней) позволяет осуществлять осаждение покрытия на подложки из материалов, чувствительных к нагреву, например, полимеров. При этом процесс более экономичен, так как не требуется расхода энергии на нагрев или охлаждение. В общем виде наглядное представление о воздействии параметров процесса на свойства покрытия может дать диаграмма структурных зон, концепция которой впервые была предложена Мовчаном и Демчишиным [22]. В первоначальном виде диаграмма содержала только одну переменную – температуру, – поскольку она (диаграмма) создавалась для случая осаждения конденсата из паровой фазы. Эта температура была нормирована по температуре плавления материала покрытия T/T_m . Это отношение известно как гомологическая температура.

Распространив концепцию гомологической температуры на плёнки, полученные методом распыления, Торнтон (Thornton) ввёл в диаграмму дополнительную ось – давление, при котором осуществлялось распыление [23] (рис. 6). В диаграмме Торнтон ось давления может быть интерпретирована как ось энергии, на которой более низкое давление соответствует более высокой энергии. Такая взаимозависимость между давлением и энергией обусловлена повышением напряжения распыления и более низкой вероятностью столкновений с частицами газа при пониженном давлении. Вопросы, касающиеся взаимосвязей структуры и фазового состава различных композиционных покрытий с гомологической температурой и энергией конденсирующихся частиц, более подробно рассмотрены в разделах, посвящённых микроструктуре конденсатов, осаждённых ионно-плазменными методами.

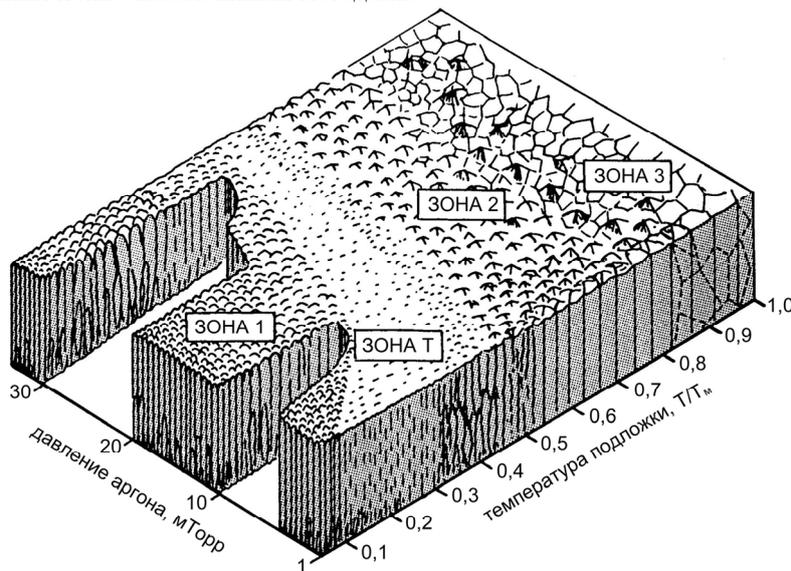


Рис. 6. Диаграмма структурных зон Торнтон [23]

Внутренние напряжения и преимущественная ориентация

Различают внешние и внутренние напряжения покрытий. Внешнее тепловое напряжение обусловлено отличием коэффициентов термического расширения подложки и материала покрытия и возникает при охлаждении подложки с покрытием от температуры осаждения T_{dep} до комнатной T_{RT} . Внешнее напряжение может быть как сжимающим так и растягивающим в зависимости от коэффициентов термического расширения α_{sub} and α_{coat} [24]:

$$\sigma_{extr} = -(\alpha_{sub} - \alpha_{coat})(T_{dep} - T_{RT}) \frac{Y}{1 - \nu}, \quad (10)$$

где Y и ν модуль упругости (Юнга) и коэффициент Пуассона материала покрытия, соответственно.

Внешнее напряжение редко превышает 1 ГПа [24, 25] и поэтому целесообразно рассмотрение внутренних напряжений или напряжений роста которые в процессе высокоэнергетичной конденсации могут достигать значительно более высоких значений. При этом особое внимание следует уделить влиянию энергии ионов, поступающих на поверхность конденсации. При крайне низких энергиях, наблюдающихся в процессах термического испарения, энергия конденсирующихся атомов действительно очень низка и составляет $kT < 1$ эВ, где T – температура источника паров. В результате формируется плёнка с низкой плотностью, с большим количеством пор, со столбчатой микроструктурой и с внутренними растягивающими напряжениями. Переходя к более высоким энергиям, характерным для распылительных устройств, получаем более плотные плёнки со сжимающими напряжениями, особенно при низких давлениях распыления. В случае значительно более высоких энергий, характерных для вакуумно-дугового осаждения, внутренние напряжения очень высоки.

Авторами работ [26, 27] установлено, что при подаче на подложку в процессе осаждения высоковольтных отрицательных импульсов, формируются плёнки с высокой адгезией к поверхности конденсации. Более того, известно также, что качество и свойства алмазо-подобных плёнок зависит от энергии конденсируемых ионов [28]. Это позволяет осаждать многослойные углерод–углеродные плёнки, т.е. плёнки с чередующимися слоями с определёнными структурными показателями [29]. При исследовании методов понижения внутренних напряжений было обнаружено, что применение импульсного высоковольтного смещения является не только средством «сшивки» покрытия с подложкой: оно может быть использовано для значительного ослабления внутренних напряжений и даже для установления преимущественных ориентаций, когда плёнки поликристаллические.

В случае TiN, всё ещё популярном во многих трибологических применениях, наблюдается снижение

внутренних напряжений более, чем на 50% [30]. Благодаря золотистому цвету TiN остаётся широко популярным как декоративное покрытие, несмотря на то, что этот материал по трибологическим характеристикам сильно уступает сероватому TiAlN. Соединение TiAlN обладает более высокой стойкостью к окислению и более низким коэффициентом трения, чем TiN, что придаёт ему преимущество как покрытию на режущих инструментах, а также в случае других применений в качестве покрытия с высокими трибологическими свойствами [31, 32]. На рис. 7 показано, что применение высоковольтных импульсов при осаждении из плазмы вакуумной дуги снижает внутренние напряжения от 7 – 8 GPa до 2 GPa как для TiN [30], так и для TiAlN [33]. Качественно это можно отнести за счёт термопиков, которые приводят к отжигу материала в областях наноразмерного масштаба [34, 35].

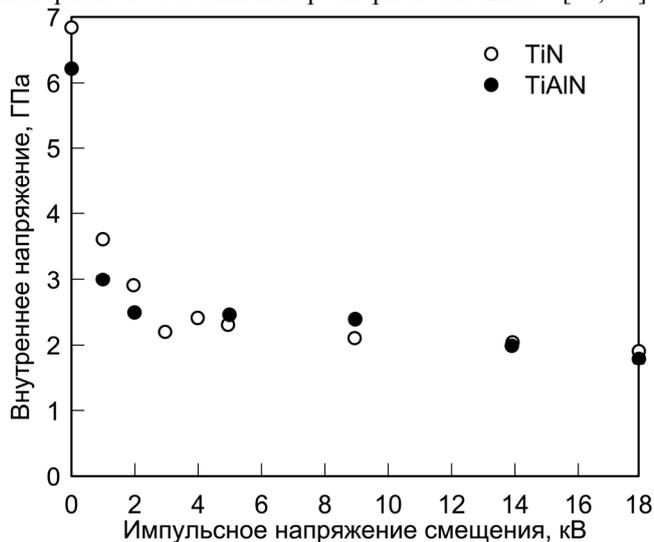


Рис. 7. Ослабление внутренних напряжений TiN и TiAlN покрытий, полученных с использованием высоковольтных импульсов напряжения смещения в процессе вакуумно-дугового осаждения [30,33].

(принимая во внимание поверхностную энергию и энергию деформации) [32, 37].

Адгезия

Адгезия покрытий, полученных вакуумно-дуговым способом, может быть как очень хорошей, так и плохой – в зависимости от материалов покрытия и подложки и от внутренних напряжений. Материалы плёнки, образующие сильную химическую связь с материалом подложки обычно характеризуются высокой адгезией. Например, углеродные плёнки могут иметь сильное сцепление с карбидообразующими материалами. Адгезия особенно сильна, когда между подложкой и покрытием формируется промежуточный градиентный слой ("подслой", "интерфейс") в результате перемешивания вследствие ионной бомбардировки. Бомбардировка высокоэнергетичными ионами ведёт к возникновению напряжений сжатия, особенно если энергия иона при соударении составляет величину порядка 100 эВ. Напряжение может достигать очень высокого уровня, зачастую свыше 5 ГПа. Обусловленная этим энергия деформации ограничивает толщину покрытия, поскольку она может превышать энергию связи интерфейса: покрытие трескается и отслаивается. Иногда подслои оказываются крепче когезионной прочности подложки, и тогда трещины могут возникать в подложке, а не в интерфейсе и покрытии. Отслаивание может происходить с довольно большой силой. Толстые нитридные покрытия на стали, например, при охлаждении могут отслаиваться с громким шумом. Фрагменты отслоившегося покрытия могут представлять собой достаточно опасные «снаряды» (поэтому защитные очки в таких случаях не лишние). В других случаях отслаивание происходит медленно, в течение минут, часов и даже дней.

Соотношение Холла–Петча

Между размерами зёрен и пределом текучести материала существует твёрдо установленное соотношение: классическое соотношение Холла–Петча, в соответствии с которым чем крупнее зерно кристаллического материала d , тем ниже его предел текучести σ_y . Это соотношение имеет вид

$$\sigma_y = \sigma_0 + k_y d^{-1/2}, \quad (11)$$

где k_y – константа для данного материала, а σ_0 – константа, характеризующая начальное напряжение, обеспечивающее движение дислокаций.

Это соотношение базируется на предположении, что границы зерна являются барьерами,

препятствующими скольжению дислокаций, т.е., чтобы дислокация преодолела барьер и получила возможность двигаться, требуется более высокая энергия [38].

Однако при очень малых размерах зёрен, около 20 нм и менее, классическое соотношение Холла-Петча реверсирует из-за изменения механизма деформации. Пластическая деформация теперь происходит не вследствие скольжения дислокаций, а в результате скольжения границ граней и приводит к инверсии (реверсированию) соотношения Холла-Петча: твёрдость материала, и его предел текучести уменьшаются с уменьшением размеров зёрен. С бомбардирующими ионами, на поверхность растущей плёнки поступают энергия и момент, воздействуя, таким образом, на её микроструктуру. Температура поверхности выше температуры подложки, так что высокоэнергетическая конденсация непосредственно определяет размеры зёрен, независимо от температуры подложки (её массивной части).

ИОННОЕ ТРАВЛЕНИЕ МЕТАЛЛОВ

При отрицательном напряжении смещения, которое обычно составляет 1000 В или несколько выше, коэффициент самораспыления, разумеется, будет превышать единицу (рис. 8), и роста плёнки не происходит: в результате удаления материала распылением. Убыль материала подложки вследствие распыления превышает поток материала в виде осаждаемых ионов и атомов. Этот процесс часто называют ионным травлением. Использование для травления ионов металла, экстрагируемых из плазмы вакуумной дуги, имеет значительные преимущества перед распространённым травлением ионами аргона.

В процессе очистки ионным травлением ионы смещают поверхностные атомы и останавливаются под поверхностью. Когда используется такой благородный газ как аргон, новый атом не образует связей, поскольку его электронная оболочка полностью заполнена. Большинство атомов аргона диффундирует к поверхности и покидает тело подложки. Но некоторые атомы аргона остаются и участвуют в формировании дефектного, непрочного промежуточного слоя перед покрытием, наносимым после очистки ионным распылением. Это может привести к проблемам при нагреве подложки и покрытия подобно тому, что происходит при работе инструмента с покрытием. В этом случае атомы аргона становятся подвижными и сливаются в небольшие пузырьки, которые сильно ослабляют интерфейс. В результате в процессе охлаждения или позже может произойти катастрофическое отслаивание покрытия.

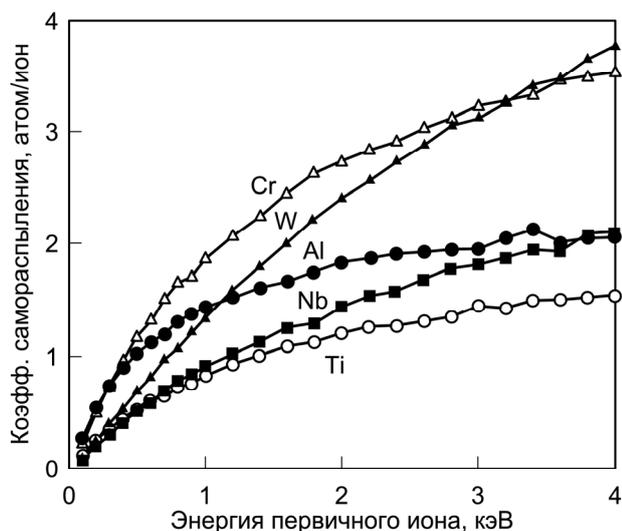


Рис. 8. Коэффициент самораспыления для некоторых металлов в функции энергии ионов. Энергетическая шкала до 4 кэВ вполне приемлема для типичного напряжения смещения до 1 кэВ при наличии многозарядных ионов [2]

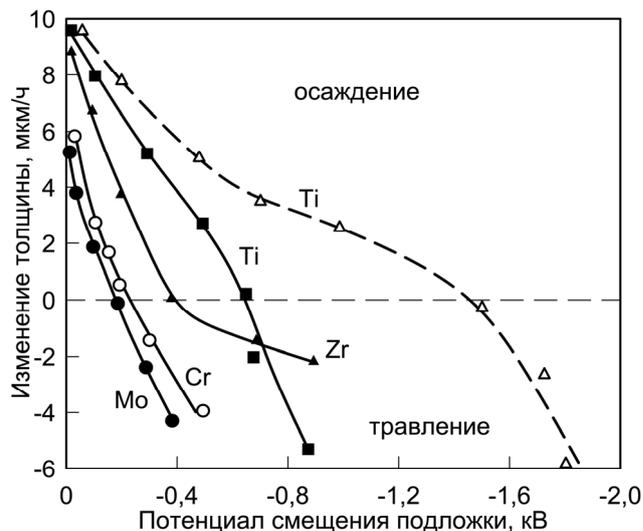


Рис. 9. Влияние ускоряющего потенциала подложки (напряжения смещения) на скорость осаждения покрытия и распыления подложки (P6M5) в потоках плазмы молибдена, хрома, циркония и титана. Остаточный вакуум $\sim 1 \cdot 10^{-5}$ Торр. Штриховая кривая — плазма титана, давление азота $2 \cdot 10^{-4}$ Торр [41]

Напротив, при травлении ионами металла образуется более совершенный, прочный промежуточный слой, отличающийся повышенной концентрацией металла, ионы которого использовались при травлении. Например, при травлении нержавеющей стали ионами хрома образуется поверхностный слой с повышенным содержанием хрома. Хром может стать частью подложки, поскольку, в соответствии с фазовой диаграммой [39], он характеризуется неограниченной растворимостью в железе при температуре ниже 512°C. В сторону покрытия хром легко связывается с другими металлами или с азотом, или с кислородом.

Травление бомбардировкой ионами металла известно с 1970х. Уже в первых экспериментах (ХФТИ) по осаждению износостойких покрытий на режущие инструменты в 1970 г. очистка поверхности перед осаждением покрытий из нитрида молибдена осуществлялась бомбардировкой ионами молибдена, а перед

осаждением нитрида титана бомбардировка производилась ионами титана. Данные по результатам измерений зависимости скорости осаждения покрытий и травления (инструментальная и нержавеющая стали) от потенциала подложки для ионов молибдена, хрома, циркония, и титана приведены в работах [40 – 42] (рис. 9).

Из приведенных кривых следует, что по мере увеличения отрицательного напряжения смещения на подложке от нуля до некоторого значения скорость осаждения покрытия падает до нуля, При этом напряжении (энергии ионов) интенсивности процессов осаждения и ионного травления выравниваются. С дальнейшим повышением отрицательного смещения превалирует процесс травления. Поэтому при очистке ионным травлением напряжение смещения на подложке следует выбирать таким, чтобы его величина превышала значение в точке равновесия. Обращает на себя внимание то, что положение точки равновесия на оси напряжения смещения сильно зависит от давления остаточных или рабочих газов в камере: чем выше давление, тем при более высоком отрицательном напряжении смещения на подложке наступает равновесие между процессами осаждения и травления (кривые для Ti на рис.9). Следует иметь в виду, что зарядность ионов металлов обычно превышает единицу, и поэтому напряжение смещения, равное, скажем, – 1000 В, трансформируется в энергию, превышающую 2 или 3 кэВ.

Одним из недостатков травления бомбардировкой ионами металлов из плазмы вакуумной дуги (с целью очистки поверхности перед осаждением покрытия) является наличие в ионном потоке макрочастиц катодного материала, которые ухудшают качество осаждаемого покрытия. Недостаток устраняется путём использования ионов, экстрагируемых из фильтрованной, очищенной от макрочастиц, вакуумно-дуговой плазмы. Этот приём полностью оправдал себя в технике осаждения нитридных покрытий [41], а также в технологии осаждения алмазоподобных покрытий [28].

ИОННАЯ ИМПЛАНТАЦИЯ И ОСАЖДЕНИЕ ПОГРУЖЕНИЕМ В ПЛАЗМУ МЕТАЛЛОВ (MePIID [2])

Во многих случаях целесообразно травление ионами металлов и высокоэнергетичную конденсацию применять одновременно в едином технологическом процессе. В зависимости от используемых материалов и энергий это может привести к ряду новых возможностей процесса. Сочетание высоко- и низкоэнергетичной ионной обработки можно рассматривать как частный случай ионно-плазменной имплантации и осаждения (plasma-based ion implantation and deposition – PBI&D), известный также как процесс ионной имплантации и осаждения погружением в плазму (plasma immersion ion implantation and deposition – PIID) [43 – 47]. Чтобы обеспечить ускорение ионов, достаточное для их имплантации, применяется довольно высокое напряжение смещения, например, в десятки киловольт. Однако, в последние годы большинство исследований сосредоточено на значительно более низких энергиях, в несколько киловольт и даже менее, особенно в тех случаях, когда конечным результатом обработки поверхности является покрытие, а не просто ионно-имплантированная поверхность. В этом смысле первоначальные работы по PIID входят в состав более общей категории стимулированных плазмой методов, для которых типичным является смещение около 1 кВ или ниже.

Фактически, идея высокоэнергетической конденсации, стимулированной ионизацией паров и смещением на подложке, изобреталась несколько раз. Но имеющим решающее влияние был метод ионного осаждения (ion plating), предложенный Мэттоксом (Mattox) в 1960х [48]. Вакуумно-дуговое осаждение с отрицательным смещением на подложке можно рассматривать как версию ионного осаждения. Одной из особенностей PIID метода является использование импульсного смещения в отличие от постоянного или высокочастотного [2]. При сочетании импульсного смещения с конденсируемой плазмой вакуумной дуги высоковольтная и низковольтная фазы смещения соответствуют фазе ионной имплантации и травления, и фазе формирования плёнки, соответственно. Основными параметрами процесса являются уровни напряжения смещения и относительные длительности имплантации/травления и осаждения (рис. 11). Если скорость ионного травления (распылением) превышает скорость конденсации, то в этом случае процесс становится чисто «имплантационным». Переход от режима осаждения к режиму травления и имплантации наблюдается при равенстве скоростей осаждения и травления:

$$(\eta_i J_i + \eta_n J_n)(\tau_{on} + \tau_{off}) = \gamma_i J_i \tau_{on}, \quad (12)$$

где η , J_i и J_n – коэффициент прилипания, потоки ионов и нейтралов соответственно, τ_{on} – длительность импульса высоковольтного смещения, τ_{off} – длительность паузы между импульсами, γ_i – коэффициент распыления (количество распылённых атомов на один падающий ион).

Возвращаясь к вопросу о высоких сжимающих напряжениях и возможности их ослабления термическими пиками, вызванными падающими ионами, можно видеть, что метод MePIID обеспечивает уникальную возможность использования стимулирования «собственными» ионами осаждения покрытий и ослабления напряжений посредством подачи импульсного напряжения смещения (рис. 10). Это наблюдалось ещё в начале 1990-х [49], но получило объяснение лишь сравнительно недавно [50]. Параметрами, определяющими степень снижения напряжения, могут быть произведение напряжения смещения и частоты следования (при постоянной длительности импульсов) или произведение напряжения смещения и коэффициента заполнения импульсов

смещения [51]. Физически эти произведения определяют ту часть объёма конденсата, которая заполнена термопиками, ослабляющими напряжения. Эффект ослабления напряжения достигает насыщения, когда объёмы термопиков перекрываются друг другом. Этот эффект наблюдается для многих материалов, таких, например, как сплавы и композиты на основе титана или углеродные конденсаты [2]. Рис. 11 иллюстрирует влияние амплитуды импульсов смещения на качество получаемых покрытий.

Метод РП&D может быть использован для равномерной обработки всех поверхностей изделий сложной формы, в том числе и таких, которые имеют глубокие впадины, щели. Поскольку изделие погружается в плазму, ионы притягиваются ко всем поверхностям, в том числе и к внутренним. Однако для равномерности обработки внутренних поверхностей необходимо, чтобы отношение размеров впадин к толщине приповерхностного слоя было достаточно велико [2].

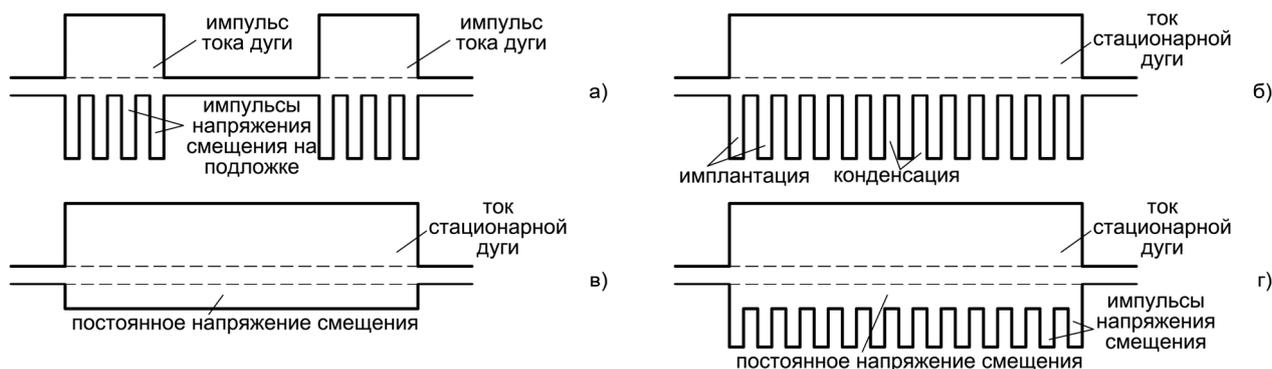


Рис. 10. Диаграммы тока дуги и напряжения отрицательного смещения на подложке. Импульсный режим дуги (а); режим дуги постоянного тока – стационарной дуги (б, в, г)

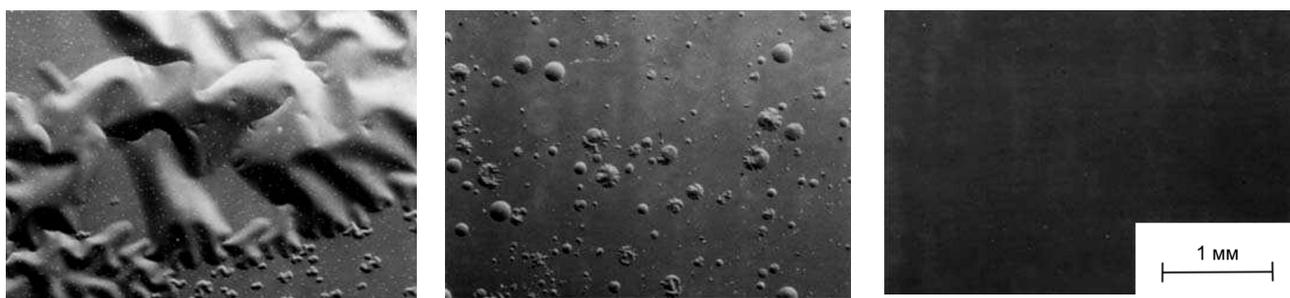


Рис. 11. Микрофотографии плёнок $Ag/YBa_2Cu_3O_x$ на кремнии, осаждённых из фильтрованной плазмы. Левый снимок: подложка заземлённая; посередине: на подложку подавались импульсы амплитудой до -200 В; справа: импульсное напряжение смещения было повышено до -2000 В [2, 49]

ОБРАБОТКА БИПОЛЯРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

Напряжение смещения на подложке обычно имеет отрицательную полярность, что обеспечивает ускорение положительных ионов и отталкивание электронов. Для травления ионами вакуумной дуги на подложку подают постоянное смещение. Альтернатива: на подложку через согласующую схему может быть подано высокочастотное напряжение. При этом в результате большой разницы между подвижностями электронов и ионов на подложке устанавливается самосогласованное отрицательное смещение. По существу, в этом случае получают смещение, подобное тому, которое имеет место в режиме постоянного тока. В режиме МЕРП отрицательное смещение на подложку подаётся в виде коротких высоковольтных импульсов, следующих с высокой частотой.

Рассмотрим режим с биполярными импульсами. Напомним, что смещение является разностью потенциалов поверхности подложки и плазмы, и эта разность потенциалов сосредоточена в слое пространственного заряда, который называют приповерхностным слоем. Электрическое поле $E = \nabla V$, обусловленное пространственным зарядом, определяется уравнением Пуассона

$$\frac{d^2V(z)}{dz^2} = -\frac{1}{\varepsilon\varepsilon_0}\rho(z), \quad (13)$$

где z – координата по нормали к поверхности, ε – диэлектрическая постоянная, ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума.

В то время, как отрицательное смещение притягивает к подложке ионы, положительное смещение

притягивает электроны. В любом случае, энергия, поступающая на подложку, представляет собой сумму потенциальной и кинетической энергий падающих на подложку частиц. В случае электронов, это kT_e (T_e – температура электронов плазмы) плюс энергия, приобретенная в результате ускорения в приповерхностном слое eV_{sh} , и, наконец, потенциальная энергия работы выхода $e\phi$.

Мотивацией к использованию не только отрицательного, но и положительного смещения, является применение электронов как энергетического средства для нагрева поверхности массивного материала или растущей плёнки без опасения передачи сколько-нибудь существенных моментов, могущих привести к "ионному повреждению" кристаллической структуры. Кроме того, в случае неэлектропроводящей поверхности подложки поток электронов может быть использован для нейтрализации положительного поверхностного заряда, накапливающегося в отрицательной фазе смещения. В режиме с биполярными импульсами покрытие нагревается, в то время как массивная подложка остаётся при более низкой температуре, что весьма важно в случае, если материал подложки чувствителен к нагреву.

Для техники биполярных импульсов характерна асимметрия токов, напряжений и длительностей фаз. Процесс может быть оптимизирован путём подбора этих трёх параметров. В том случае, если электропроводность обрабатываемой поверхности сравнительно невелика, униполярного импульсного смещения может быть достаточно в том отношении, что во время отсутствия напряжения между импульсами приповерхностный слой схлопывается и, в связи с тем, что на поверхности накоплен положительный заряд, электроны плазмы могут достичь поверхность без преднамеренной подачи на подложку положительного импульса смещения.

ПОТЕНЦИАЛЫ СМЕЩЕНИЯ ПОДЛОЖКИ И ПЛАЗМЫ

Смещением V_b обычно называют разность потенциалов подложки V_s и плазмы V_p :

$$V_b \equiv V_s - V_p. \quad (14)$$

От потенциала смещения зависят потоки и энергия частиц, поступающих на подложку. В большинстве случаев на подложку подают отрицательное напряжение смещения, поскольку намереваются ускорить положительные ионы с тем, чтобы получить возможность управлять их энергией при соударении с поверхностью подложки, что является решающим обстоятельством, определяющим результирующую скорость осаждения (скорость поступления частиц минус скорость распыления) и свойства покрытия.

Обычно, потенциал плазмы точно не известен. Фиксированным является потенциал земли, и поэтому точкой отсчёта потенциала в большинстве случаев является "земля". Строго говоря, приложенное напряжение относительно земли не есть напряжение смещения, определяемое тождеством (14). Однако, если приложенное напряжение высокое, $V \gg kT_e/e$, то разницей между потенциалами земли и плазмы, которая обычно составляет величину около $3kT_e/e \sim 10$ В, можно пренебречь.

В то время, как в подавляющем большинстве технологий с применением смещения, на подложку подают отрицательный потенциал (относительно земли или относительно потенциала плазмы), представляется вполне возможным сместить потенциал плазмы (относительно земли или заземлённой подложки). Это можно назвать потенциалом (напряжением) смещения плазмы в отличие от потенциала (напряжения) смещения подложки. Положительное смещение плазмы эквивалентно отрицательному смещению подложки. В крайних случаях, чтобы повысить суммарное напряжение смещения, могут быть одновременно смещены потенциалы как подложки (в сторону отрицательного напряжения), так и плазмы (в сторону положительного напряжения) [2].

Смещение плазмы может стать выходом из положения в том случае, если на подложку нельзя подавать напряжение, например, когда подложки располагаются на постоянно заземлённых держателях, загружаемых и разгружаемых роботами.

Следует, однако, отметить, что применение напряжения смещения на подложке является предпочтительным, т.к. нахождение плазмы под высоким положительным потенциалом может привести к нежелательным побочным явлениям, например, к распылению всех заземлённых деталей в рабочей камере, в том числе – её стенок. Более того, при высоком положительном потенциале плазмы на упомянутых элементах системы могут возникать катодные пятна (так называемые «микродуги»), что представляет собой крайне нежелательное явление.

МИКРОДУГИ

Микродуга возникает в том случае, когда напряжённость локального электрического поля на подложке или на поверхности какого-либо другого элемента системы под отрицательным напряжением смещения превышает пороговую величину около 10^8 В/м. "Под отрицательным напряжением смещения" следует понимать как "отвечающий уравнению (14)". Из этого следует, что микродуга может возникнуть также и на поверхности заземлённого элемента.

Действительная величина поверхностной напряжённости поля, при которой возникает микродуга, зависит от материала и состояния поверхности. Даже при относительно невысокой напряжённости поля может вспыхнуть микродуга, поскольку напряжение падает на тонком приповерхностном слое, и в промежутке

подложка–стенка или подложка–источник распределяется неравномерно. В плотной плазме приповерхностный слой может быть очень тонким, миллиметр или много меньше, и потому поверхностная напряжённость поля может быть весьма высокой. В условиях сильного приповерхностного поля автоэмиссия электронов из локального эмиссионного центра может выйти из-под контроля, перейти в нестационарный режим и далее – во взрывную фазу с образованием катодного пятна вакуумно-дугового разряда [52].

Плотная плазма, истекающая из катодного пятна, вызывает закорачивание напряжения на приповерхностном слое, его пробой. При этом наблюдается скачкообразное увеличение тока, которое совместно с низким напряжением является "опознавательным знаком" пробоя и формирования катодного пятна микродуги. В связи с тем, что внутреннее сопротивление внешней цепи высоковольтного напряжения смещения сравнительно велико, микродуга горит сравнительно недолго – от микросекунд до нескольких миллисекунд. Но этого в большинстве случаев достаточно для того, чтобы произвести на обрабатываемой поверхности подложки недопустимые повреждения. Избежать возникновения микродуг или, по крайней мере, снизить вероятность их появления можно, используя импульсное смещение, более низкое напряжение смещения, пониженную плотность плазмы или комбинацию этих приёмов.

Современные источники напряжения смещения снабжены быстродействующими устройствами для подавления микродуг, которые "чувствуют" скачкообразное увеличение тока и/или падение напряжения. Если это происходит, источник быстро отключается, возникшее катодное пятно "погасает", его кратер остывает (на это уходит обычно несколько миллисекунд), затем подача напряжения смещения возобновляется для продолжения рабочего процесса с минимальными его нарушениями.

ДУГОВОЙ РАЗРЯД В ПРИСУТСТВИИ ГАЗОВ НИЗКОГО ДАВЛЕНИЯ

Разряд в присутствии аргона

В большинстве случаев промышленного применения вакуумно-дуговых методов осаждения покрытий и поверхностного модифицирования процесс ведут в присутствии реакционных газов в рабочей камере. Наиболее распространён этот приём в технике получения твёрдых и/или декоративных покрытий сложного состава, таких, например, как TiN или TiAlN. Здесь основной упор будет сделан на процессы, происходящие в присутствии реакционных газов, на подложке и на катоде.

Для стабилизации дугового разряда в рабочую камеру часто вводят инертный газ при давлении порядка 10^{-2} Па. Для этого обычно используют аргон в связи с его сравнительно невысокой стоимостью. Инертность газа означает его безвредность по отношению к окружающей среде, технологическому оборудованию и обслуживающему персоналу. Выбор аргона обусловлен также тем, что этот газ удобен для осуществления процесса распыления (травления).

Присутствие аргона усиливает обратный поток ионов на катод в окрестностях центра эмиссии, тем самым повышая вероятность инициирования новых эмиссионных центров (гл. 3 [2]). Этот обратный поток ионов состоит как из ионов металла, так и из ионов газа. Последние обладают энергией (энергией ионизации), достаточной для того, чтобы вызвать потенциальную эмиссию вторичных электронов, которые, будучи высвобождены, ускоряются в катодном слое, хотя и не все, и всего лишь только до 20 эВ, типичных для катодного падения в дуге. Из-за флуктуаций напряжения в катодном слое некоторые электроны могут быть ускорены до энергий, даже превышающей 20 эВ. Так или иначе, даже 20 эВ – это много больше, нежели температура электронов в плазме дуги, обычно составляющая 2 – 4 эВ. Ускоренные электроны могут вызвать прямую ударную ионизацию, хотя более вероятен нагрев электронного газа с последующим усилением процесса ионизации. Ионизация аргона существенно облегчается наличием в нём метастабильных атомов с большим временем жизни.

Присутствие аргона не является необходимым условием горения вакуумной дуги: процессы в катодном пятне могут происходить в высоком и даже в сверхвысоком вакууме при условии, что ток дуги достаточно велик (обычно 100 А и более), а напряжение холостого хода системы электропитания высокое (обычно 80 В или выше). Присутствие аргона может ослабить требования к этим параметрам, а горение дуги сделать более стабильным, но в то же время его присутствие повлияет на структуру осаждаемого конденсата.

Реактивное осаждение

Поскольку стабилизация дуги аргоном является, практически, общепринятым приёмом, реактивное осаждение осуществляется добавлением реакционного газа в аргон, хотя реакционный газ может быть использован и без смешивания с аргоном. Слово "реакционный" относится к случаю, когда между атомами металла плазменного потока и атомами (и молекулами) газа устанавливается химическая связь. Такими газами чаще всего являются азот, кислород и углеродсодержащие газы.

Реакционные газы вступают в реакцию с металлом не только на подложке, но также участвуют в процессах формирования плёнок на стенках камеры, экранах, подложкодержателях, аноде и катоде. Осаждение покрытия на аноде может привести к "печально" известному эффекту "исчезнувшего анода", когда синтезируемое на аноде покрытие состоит из электроизоляционного материала. Катодная плёнка приводит к формированию катодных пятен I-го типа, для которых характерны кратеры меньших размеров и более низкие

скорости эрозии по сравнению со скоростями эрозии чистых поверхностей металла.

При осуществлении дугового метода осаждения выполняется баланс между формированием и удалением композитного слоя с поверхности катода. Этот баланс определяется целым рядом факторов: парциальным давлением реакционного газа, активацией этого газа (диссоциацией, возбуждением, ионизацией), температурой мишени или катода, средней плотностью мощности, а также тем, в каком режиме происходит процесс – в импульсном или в стационарном.

В импульсном режиме композитный слой на катоде формируется в промежутках между импульсами, так что дуга горит с катодными пятнами преимущественно первого типа. В режиме постоянного тока или в импульсном режиме с очень высоким коэффициентом заполнения (при длинных импульсах и высокой частоте повторения), ситуация более сложная и зависит от скорости формирования и скорости удаления композитного слоя. Если рабочая поверхность катода мала, а парциальное давление реакционного газа низкое, или энтальпия формирования композита невелика, то количество удаляемого пятном катодного материала больше, чем количество формируемого композитного материала. В этом случае дуга горит с катодными пятнами второго типа и в составе плазмы доминирует металл, подобно случаю дуги в высоком вакууме. В противоположном случае, когда площадь катода велика, парциальное давление реакционного газа высокое, а композит характеризуется высокой энтальпией формирования, на катоде формируется плёнка композита, дуга горит с катодными пятнами первого типа, и в состав генерируемой плазмы входят как ионы металла, так и ионы газа. Различные катодные материалы обладают различным сродством к реакционному газу. В окрестностях горячего кратера, остающегося катодным пятном, газ может диффундировать вглубь катодного материала. Исследования показали, что в случае катода из титана в присутствии азота поверхность электрода становилась умеренно азотированной, в то время как поверхность катода из хрома оставалась металлической даже при относительно высоких давлениях азота [53]. В присутствии композитного слоя на катоде высокая напряжённость локального электрического поля способствует инициации нового катодного пятна. Это поле возникает в результате накопления заряда на поверхности композитного слоя, что особенно актуально в случае, если композитный слой является электроизолирующим, т.к. проводимость слоя определяет потенциал поверхности. Поверхностный заряд определяется алгебраической суммой токов ионов и электронов, тока смещения и тока утечки через композитный слой на катоде. Если этот слой очень тонкий, или обладает значительной проводимостью, то ток утечки велик, и потенциал поверхности почти равен потенциалу катода. В противном случае, когда формируемый слой обладает высокими изоляционными свойствами, током утечки можно пренебречь, и поверхность приобретает плавающий потенциал. Это значит, что потенциал поверхности саморегулируется так, чтобы потоки электронов и ионов из плазмы были сбалансированы. Понятно, что в этом случае значительная часть напряжения падает на композитном слое и может привести к его пробое.

Если композитный слой является диэлектриком, а толщина его составляет всего несколько монослоёв, то заряд переносится сквозь слой туннелированием. Через закороченный потенциальный барьер осуществляется усиление автоэмиссии электронов. Ситуация изменяется, когда толщина композитного слоя достигает нескольких нанометров. В слое могут возникать очень сильные поля, которые способны привести к пробое диэлектрика и зажиганию катодного пятна первого типа. Вероятность инициации пятна при наличии диэлектрической плёнки выше, чем в случае наноострий, поскольку коэффициент усиления локального поля, обусловленного диэлектрическим слоем, выше. Поэтому иницирование катодного пятна на поверхности с диэлектрическими плёнками и включениями более вероятно, чем на шероховатой, но чистой поверхности.

Следует отметить ещё одну из причин повышенного внимания к вопросу о явлении "отравления" катода вакуумно-дугового разряда в технике осаждения покрытий и поверхностного модифицирования материалов. Формирование диэлектрической плёнки на катоде в процессе "отравления" способствует эффективному подавлению эмиссии более или менее крупных макрочастиц, которые испускаются катодными пятнами второго типа на чистых металлических поверхностях. Кратеры меньших размеров, формируемые пятнами первого типа, не могут испускать макрочастицы больших размеров, и это сильно сказывается на значительном повышении качества осаждаемого покрытия даже в отсутствие плазменного фильтра.

Взаимодействие металлической плазмы дуги с газовой мишенью, зародышеобразование и рост конденсата

Присутствие реакционного газа воздействует на плазму вакуумной дуги различными путями. Тип катодных пятен и условия эрозии сильно зависят от условий на катоде, что, в свою очередь, определяется присутствующей газовой атмосферой. Металлическая плазма взаимодействует с газом, который воздействует на поток и энергию ионов. Взаимодействие зависит от давления газа, от типа газа и от других факторов, которые могут вызвать турбулентное перемешивание, ударные волны, рассеяние и охлаждение частиц плазмы. Могут происходить различные плазмохимические реакции, включая процессы перезарядки и диссоциации молекул, что активирует газ, способствуя формированию композитов на поверхности. Под активацией понимают все процессы, способствующие формированию этих композитов. Это – диссоциация, ионизация, электронное возбуждение атомов и молекул газа.

Основные вопросы образования зародышей и роста конденсата изложены в [2]. Были введены понятия

классических режимов роста – послойный (двумерный) режим, островковый (трёхмерный) режим и послойный с переходом на островковый рост (смешанный режим).

В процессе реактивного осаждения возникают дальнейшие изменения режимов. Во-первых, следует принять во внимание то, что разные осаждающиеся компоненты могут поступать на поверхность конденсации с большим разбросом величин кинетической энергии. Типичным является случай, в котором металлический компонент поставляется вакуумной дугой катодного типа и, следовательно, обладает высокой энергией, свойственной процессу высокоэнергетичной конденсации. Ионы металла могут сталкиваться с молекулами газа, и поэтому их энергия может быть ниже, чем в условиях вакуума. Ионы могут иметь более низкую зарядность, что является ещё одним фактором снижения кинетической энергии, поскольку ускорение таких ионов в катодном слое менее эффективно. Часть осаждающихся атомов может поступать из газовой фазы. Такие атомы, в отличие от ионов металла, проходят сквозь катодный слой, не испытывая ускорения.

С другой стороны, в сравнении с реакционным осаждением методом распыления или испарения, в случае вакуумно-дугового осаждения газовый компонент более энергетичен и активирован в связи со взаимодействием с энергетичными частицами потоков, испускаемых катодными пятнами. Активация – очень важный фактор, влияющий на стехиометрию формируемого композитного слоя. Так, тройная связь молекулы азота N_2 очень сильна. Такие частицы, падающие на поверхность, не участвуют ни в каких химических реакциях и с большой вероятностью отскакивают назад в приповерхностное пространство. Активированные частицы (N , N^* , N^+ , N_2^* , N_2^+ в случае азота) вступают в реакцию гораздо легче, чем молекула N_2 в основном состоянии. Реакции происходят преимущественно на поверхности: здесь требование сохранения энергии и момента легко выполняются, т.к. тело подложки поглощает любые излишки энергии или момента. Напротив, двухчастичные столкновения редко приводят к химическим связям – частицы чаще сталкиваются, не вступая в реакцию даже при наличии энергии, достаточной для преодоления энергетического барьера для вступления в реакцию.

Реакционное осаждение не всегда означает использование реакционного газа. Если используется более одного осаждаемого материала, то на поверхности они могут вступать в реакцию, формируя слой композита. Так, например, используя двухкатодный источник плазмы, на подложку можно направить потоки титана и углерода; указанные элементы могут вступить в реакцию с образованием TiC слоя.

Водяные пары и водород

Практически все процессы реакционного осаждения осуществляются в высоковакуумных рабочих камерах. В них остаточный газ состоит в основном из водяных паров при условии, что сколько-нибудь существенные течи отсутствуют. Водяной пар находится в термодинамическом равновесии с плёнкой воды, адсорбированной на всех поверхностях, в том числе на стенках камеры, на подложках и подложкодержателях. Толщина адсорбированного слоя зависит, главным образом, от температуры. Повышение температуры ведёт к смещению равновесия к более тонким адсорбированным слоям – это основа для систем «сушки прогревом». Вода может быть эффективно удалена путём комбинирования прогрева с ультрафиолетовым облучением внутрикамерными лампами, а также «промывкой» горячим азотом.

Возвращаясь к непрогреваемым камерам и внутрикамерной оснастке при комнатной температуре, с учётом изложенного можно констатировать присутствие в них воды. Десорбция водяной плёнки стимулируется энергией, поступающей на поверхность в различной форме, и это наиболее эффективно происходит при контакте поверхности с потоками плазмы. Например, в импульсной вакуумно-дуговой системе плазменный поток взаимодействует со всеми её компонентами, и поэтому водяные пары становятся составляющей этого потока, особенно сразу после зажигания дуги. Поскольку вода является одним из компонентов плазмы, не удивительно, что в конденсируемом покрытии обнаруживаются водород и кислород. Такие свойства как твёрдость, модуль упругости и показатель преломления композитных плёнок, содержащих смесь оксидов с гидроксидами, будут отличаться от соответствующих показателей плёнок на основе оксидов. В случае осаждения нитридов плёнки могут содержать неожиданно большие количества кислорода и водорода.

Мерами ослабления нежелательного поглощения водорода являются: (i) улучшение вакуумных условий в технологической системе, (ii) работа в режиме постоянного тока, а не в импульсном, (iii) прогрев подложки.

Источником водорода, попадающего в конденсат, может быть не только вода. Этот газ может быть введен в рабочую камеру преднамеренно, например, при использовании газообразных углеводородов для получения покрытий на основе карбидов. Поглощение водорода сильно зависит от температуры. Так плёнки, осаждённые при температуре подложки 500°C и ниже, содержали большое количество водорода, в то время как в плёнках, осаждённых при 600°C , водород практически отсутствовал. Безводородные плёнки по износостойкости и антиэрозионным качествам превосходят водородсодержащие плёнки.

Для многих подложек очень высокие температуры недопустимы из-за нежелательных фазовых изменений (потеря твёрдости инструментальными сталями) или необратимых повреждений (в изделиях из полимеров). Поэтому в каждом случае следует рассматривать, какой уровень концентрации кислорода и водорода требуется, и какой – допустим. Краткие сведения о воде и водороде приведены здесь с целью предостеречь читателя от возможной недооценки их роли в процессах вакуумно-дугового осаждения покрытий.

Осаждение нитридных покрытий из хаотизированных потоков плазмы

В результате изучения влияния давления газа на параметры процесса конденсации обнаружено повышение скорости осаждения покрытий в области повышенных давлений азота (свыше ~ 1 Па). Так в работе [54] при исследовании процесса формирования покрытий на основе нитрида титана в системе с фокусировкой плазменного потока обнаружен рост скорости осаждения конденсата при давлении около 5 Па. Этот эффект авторы объясняют снижением плотности конденсата при таких давлениях газа. Исследования процесса осаждения покрытий из нитридов титана в системе со встречными плазменными потоками (системе формирования радиальных потоков – СФРП) [55] показали рост скорости осаждения в области давлений 1 – 2,5 Па. Это явление авторы объясняют увеличением радиального потока частиц вследствие хаотизации плазмы в центре системы, где происходит встреча, и смешение двух первичных потоков в результате столкновения ионов металла с частицами газа. При горении дуги в режиме с положительным анодным падением потенциала (давление порядка 5 – 6 Па) также наблюдаются повышенные скорости роста толщины конденсата [56]. Горение дуги с положительным анодным падением потенциала характеризуется значительным (до 40 – 50 В) ростом напряжением горения разряда. По мнению авторов, это, в свою очередь, ведёт к повышению степени фокусировки плазменного потока, что и обуславливает рост скорости осаждения нитридных покрытий.

Результаты исследований, приведенные в цитируемых работах [54 – 56] дополнены данными, полученными Леоновым и Хороших, изучавших влияние давления азота и некоторых других рабочих газов (O_2 , Ar), геометрии и потенциала смещения на подложке, а также индукции магнитного поля на процесс осаждения покрытий из потоков плазмы вакуумной дуги [57 – 59]. Полученные ими результаты могут быть кратко сформулированы следующим образом:

- Характер влияния давления разных газов (N_2 , O_2 , Ar) на скорость осаждения покрытий различен.

- При давлении азота 1,5 – 5,0 Па происходит повышение скорости осаждения покрытий, существенно зависящее от размеров подложки.

- Особенностью процесса осаждения покрытий из нитрида титана является повышение плотности потока массы катодного материала (титана) в приосевой области плазменного потока при давлении азота 2 – 10 Па.

- При горении дуги в присутствии азота в области давлений 1,5 – 5,0 Па наблюдается высокая степень корреляции зависимостей ионного тока и скорости осаждения нитридных покрытий на поверхность конденсации от величины магнитного поля. В области более низких давлений азота (0,5 – 0,8 Па) подобная корреляция отсутствует.

- С повышением давления газа в разрядном пространстве происходит увеличение концентрации плазмы, обусловленное снижением энергии ионов металла при столкновении с молекулами газа. Эти столкновения приводят также к потере направленности плазменного потока, т.е. к хаотизации плазмы.

- Снижение энергии ионов и хаотизация плазменного потока обуславливают высокие скорости осаждения покрытий. Критерием малости размеров обрабатываемых изделий служит протяжённость слоя объёмного заряда ионов на границе плазма-подложка.

- Влияние потенциала смещения на скорость конденсации особенно сильно проявляется в случае цилиндрических подложек малого диаметра, обрабатываемых в присутствии азота. Для таких подложек обнаружен существенный (примерно в 4 раза) рост скорости осаждения с повышением отрицательного потенциала смещения подложки в диапазоне ~ 100 – 700 В и давления газа $\sim 0,3$ – 2,5 Па.

- Покрытия, получаемые при повышенных давлениях азота, обладают высокими механическими характеристиками. Отличия в свойствах покрытий, осажённых на лицевой по отношению к источнику плазмы и на обратной стороне образца, связаны с влиянием капельной фазы эрозии катода, присутствующей на лицевой стороне поверхности образца.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ более полусотни наиболее известных работ, опубликованных, главным образом, на протяжении двух последних десятилетий, позволил получить более-менее определённое представление о физике явлений, представляющих основу технологических процессов вакуумно-дугового осаждения покрытий и поверхностного модифицирования материалов. Рассмотрены вопросы, касающиеся высокоэнергетической конденсации и субимплантации, включая явления эмиссии вторичных электронов, самораспыления, ионного травления, ионной имплантации и осаждения погружением в плазму металлов. Проиллюстрирована зависимость свойств плёнок (структуры, уровня внутренних напряжений, адгезии и др.), полученных высокоэнергетической конденсацией, от параметров процесса осаждения; показана роль потенциала смещения подложки и плазмы в пространстве между катодом и подложкой. Рассмотрены особенности дугового разряда в вакууме и в присутствии газов (инертных и химически активных), взаимодействие металлической плазмы с газовой мишенью, роль водяных паров и водорода в процессе синтеза покрытий на основе соединений металлов с неметаллами, описаны особенности конденсации из хаотизированных потоков плазмы. Полученная картина физических явлений в процессе синтеза покрытий осаждением из плазмы вакуумной дуги может быть полезной при разработке технологических процессов создания новых функциональных покрытий.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Colligon J.S. Energetic condensation: processes, properties, and products // *J. Vac.Sci. Technol.* - 1995. – Vol.A 13. – P.1649–1657.
2. Anders André. Cathodic Arcs – From Fractal Spots to Energetic Condensation. – Springer, 2008. – 540 p.
3. Greene J.E., Nucleation, film growth, and microstructural evolution // in *Handbook of Deposition Technologies for Films and Coatings*, Bunshah, R.F., (Ed.), 2 nd ed. – NJ: Noyes, Westwood, 1994. – P. 681–739.
4. Hubler G.K., Sprague J.A. Energetic particles in PVD technology: particle surface interaction processes and energy-particle relationships in thin film deposition // *Surf. Coat. Technol.*– 1996. – Vol. 81.– P. 29–35.
5. Xu S., Evans B.L. Nucleation and growth of ion beam sputtered metal films // *J. Mat. Sci.*– 1992.– Vol. 27.– P. 3108–3117.
6. Gill S.P.A. Self-organised growth on strained substrates: the influence of anisotropic strain, surface energy and surface diffusivity // *Thin Solid Films.*– 2003.– Vol. 423.– P. 136–145.
7. Petrov I., Barna P.B., Hultman L., Greene J.E. Microstructural evolution during film growth, // *J. Vac. Sci. Technol.* – 2003.– Vol. A 21. – P. S117–S128.
8. Uhlmann S., Fraunheim T., Lifshitz Y. Molecular-dynamics study of the fundamental processes involved in subplantation of diamondlike carbon // *Phys. Rev. Lett.*– 1998. – Vol. 81. – P. 641–644.
9. Lifshitz Y., Kasai S.R., Rabalais J.W., Eckstein W. Subplantation model for film growth from hyperthermal species // *Phys. Rev.*– 1990.– Vol. B 41 – P. 10468–10480.
10. Ronning C. Ion-beam synthesis and growth mechanism of diamond-like materials // *Appl. 2003 Phys.* – Vol. A 77. – P 39–50.
11. Carlson T.A., Nestor C.W., Wasserman N., McDowell J.D. Calculated ionization potentials for multiply charges ions // *Atomic Data.* –1970. – No. 2. – P. 63–99.
12. Lide D.R., (ed.) *Handbook of Chemistry and Physics*, 81st Edition. – New York: CRC Press, Boca Raton, 2000.
13. Burgdörfer J. and Meyer F. Image acceleration of multiply charged ions by metallic surfaces // *Phys. Rev.* –1993. –Vol. A 47. – P.R20–R22.
14. Haägg L., Reinhold C.O., Burgdörfer J. Energy gain of highly charged ions in front of LiF // *J. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* –1997. – Vol. B 125. – P. 133–137.
15. Winter, H., Aumayr F. Interaction of slow HCl with solid surfaces // *Physica Scripta.* –2001. – Vol. 92. – P. 15–21.
16. Schenkel T., Barnes A.V., Niedermayr T.R., et al. Deposition of potential energy by slow, highly charged ions // *Phys. Rev. Lett.*–1999. – Vol. 83. – P. 4273–4276.
17. Al-Nimr M.A., Arpacı V.S. Picosecond thermal pulses in thin metal films // *Appl. Phys.* –1999. – Vol. 85 – P. 2517–2521.
18. Musil J. Hard and superhard nanocomposite coatings // *Surf. Coat. Technol.* –2000. – Vol.125. – P. 322–330.
19. Anders A., Yushkov G. Measurements of secondary electrons emitted from conductive substrates under high-current metal ion bombardment // *Surf. Coat. Technol.* –2001. – Vol. 136 – P. 111–116.
20. Kress J.D., Hanson D.E., Voter A.F., Liu C.L., Liu X.Y., Coronell D.G. Molecular dynamics simulation of Cu and Ar ion sputtering of Cu (111) surfaces // *J. Vac. Sci. Technol.* –1999. – Vol. A 17. – P. 2819–2825.
21. Hanson D.E., Stephens B.C., Saravanan C., Kress J.D. Molecular dynamics simulations of ion self-sputtering of Ni and Al surfaces // *J. Vac. Sci. Technol.*– 2001.– Vol. A 19. – P. 820–825.
22. Movchan B.A., Demchishin A.V. Investigation of the structure and properties of thick vacuum-deposited films of nickel, titanium, tungsten, alumina and zirconium dioxide // *FMM* – 1969.– Vol.26, No. 4. – P. 653–660.
23. Thornton, J.A. Influence of apparatus geometry and deposition conditions on the structure and topography of thick sputtered coatings // *J. Vac. Sci. Technol.* – 1974.– Vol. 11.– P. 666–670.
24. Oettel H., Wiedemann R., Preiler S. Residual stresses in nitride hard coatings prepared by magnetron sputtering and arc evaporation // *Surf. Coat. Technol.* – 1995. – Vol.74–75. P. 273–278.
25. Vlasveld A.C., Harris S.G., Doyle E.D., Lewis D.B., Munz W.D. Characterization and performance of partially filtered arc TiAlN coatings // *Surf. Coat. Technol.* – 2002. – Vol. 149. – P. 217–223.
26. Brown I. G., Anders A., Anders S., et al. Plasma synthesis of metallic and composite thin films with atomically mixed substrate bonding // *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B.* – 1993. – Vol. 80/81. P. 1281–1287.
27. Anders A., Anders S., Brown I. G., Dickinson M. R., MacGill R. A. Metal plasma immersion ion implantation and deposition using vacuum arc plasma sources // *J. Vac. Sci. Technol. B.* – 1994. – Vol. 12. –P. 815–820.
28. Strel'nitskij V.E., Aksenov I.I. DLC films. – Kharkov: “Kontrast” – 2006, 344 p.
29. Anders S., Callahan D. L., Pharr G. M., Tsui T. Y., Bhatia C. S. Multilayers of amorphous carbon prepared by cathodic arc deposition // *Surf. Coat. Technol.*– 1997.– Vol. 94/95.– P. 189–194.
30. Lim S. H. N., McCulloch D. G, Bilek M. M. M., McKenzie D. R. Minimization of intrinsic stress in titanium nitride using a cathodic arc with plasma immersion ion implantation // *J. Appl. Phys.* – Vol. 93. – P. 4283–4288.
31. Hörling A., Hultman L., Odén M., Sjöln J., Karlsson L. Mechanical properties and machining performance of Ti Al N-coated cutting tools // *Surf. Coat. Technol.* – 2005. – Vol. 191. – P. 384–392.
32. Hörling A., Hultman L., Odén M., Sjöln J., Karlsson L. Thermal stability of arc evaporated high aluminum-content Ti Al N thinfilms // *J. Vac. Sci. Technol. A.* – 2002 – Vol. 20. – P. 1815–1823.
33. Pelletier J., Anders A. Plasma-Based Ion Implantation and Deposition. A Review of Physics, Technology, and Applications // *IEEE transactions on plasma science.* – 2005. – VOL. 33, No. 6. – P. 1945–1959.
34. Bilek M. M. M., Tarrant R. N., McKenzie D. R., Lim S. H. N., McCulloch D. G. Control of stress and microstructure in cathodic arc deposited films // *IEEE Trans. Plasma Sci.* – 2003.– Vol. 31, No. 5.– P. 939–944.
35. Bilek M. M. M., McKenzie D. R., Moeller W. Use of low energy and high frequency PBII during thin film deposition to achieve relief of intrinsic stress and microstructural changes // *Surf. Coat. Technol.* –2004. – Vol. 186. – P. 21–28.
36. Anders A. Yushkov G. Y. Ion flux from vacuum arc cathode spots in the absence and presence of magnetic fields // *J. Appl. Phys.* – 2002. – Vol. 91, – P. 4824–4832.
37. McKenzie D. R Bilek M. M. M. Thermodynamic theory for preferred orientation in materials prepared by energetic condensation // *Thin Solid Films.* – 2001. – Vol. 382. – P. 280–287.

38. Coeur F. Le, Lagarde T., Pelletier J., Arnal Y., Burke R. Distributed electron cyclotron resonance plasma immersion for large area ion implantation // *Rev. Sci. Instrum.* – 1998. – Vol. 69. – P. 831–836.
39. Goebel D. M., Adler R. J., Beals D. F., Reass W. A., Pulser technology // in *Handbook of Plasma Immersion Ion Implantation and Deposition*, Anders A., (ed). – New York: Wiley. – 2000. – P. 467–513.
40. Collins G., Hutchings R., Short K. T., Tendys J., van der Valk C. H. Development of a plasma immersion ion implanter for the surface treatment // *Surf. Coat. Technol.*, vol. 84, pp. 537–543.
41. Aksenov I.I., Andreev, Bren' V.G. et al. Pokrytiya, poluchennyye kondensatsiei plazmennyyh potokov v vakuume (sposob kondensatsii s ionnoi bombardirovkoi) // *UFZh.* – 1979. – T. 24, No. 4. – P. 515–525.
42. Hanson D.E., Stephens B.C., Saravanan C., Kress J.D. Molecular dynamics simulations of ion self-sputtering of Ni and Al surfaces // *J. Vac. Sci. Technol.* – 2001. – Vol. A 19. – P. 820–825.
43. Aksenov I.I., Belous V.A., Padalka V.G., Khoroshikh V.M. Poluchenie pokrytii na osnove okisi alyuminiya iz separirovannogo potoka plazmy vakuumnoi dugi // *Fizika i khimiya obrabotki materialov.* – 1977. – No. 6. – P. 89–92.
44. Anders A., (ed.) *Handbook of Plasma Immersion Ion Implantation and Deposition.* – New York: John Wiley & Sons. – 2000.
45. Conrad J.R., Radtke J.L., Dodd R.A., Worzala F.J., Tran N.C. Plasma source ion-implantation technique for surface modification // *J. Appl. Phys.* – 1987. – Vol. 62. – P.4591–4596.
46. Brown I.G., Godechot X., Yu K.M. Novel metal ion surface modification technique // *Appl. Phys. Lett.* – 1991. – Vol. 58. – P. 1392–1394.
47. Anders A. From plasma immersion ion implantation to deposition: a historical perspective on principles and trends // *Surf. Coat. Technol.* – 2002. – Vol.156. – P.3–12.
48. Mattox D.M. Film deposition using accelerated ions // *Electrochem. Technol.* – 1964. – Vol.2. – P.295–298.
49. Anders A., Anders S., Brown I.G., Dickinson M.R., MacGill R.A. Metal plasma immersion ion implantation and deposition using vacuum arc plasma sources // *J. Vac. Sci. Technol.* – 1994. – Vol. B 12. – P. 815–820.
50. Bilek M.M.M., McKenzie D.R., Moeller W. Use of low energy and high frequency PBII during thin film deposition to achieve relief of intrinsic stress and microstructural changes // *Surf. Coat. Technol.* – 2004. – Vol. 186. – P. 21–28.
51. Bilek M.M.M., Tarrant R.N., McKenzie D.R., Lim S.H.N., McCulloch D.G. Control of stress and microstructure in cathodic arc deposited films // *IEEE Trans. Plasma Sci.* – 2003. – Vol. 31. – P. 939–944.
52. Mesyats G. A. *Cathode phenomena in a vacuum discharge.* – M.: Nauka, 2000.
53. Kühn M., Richter F. Characteristics in reactive arc evaporation // *Surf. Coat. Technol.* – 1997. – Vol 89. – P. 16–23.
54. Aksenov I.I., Antuf'yev Yu.P., Bren' V.G., Khoroshikh V.G. Vliyanie davleniya gaza v reaktsionnom obyeme na protsess sinteza nitridov pri kondensatsii plazmy metallov // *Khimiya vysokikh energii.* – 1986. – Vol. 20.– No.1. – P. – 82–86.
55. Aksenov I.I., Khoroshikh V.M., Lomino N.S., Ovcharenko V.D., Zadneprovskij Yu.A. Transformation of axial vacuum-arc plasma flows into radial streams and their use in coating deposition // *IEEE Trans. Plasma Sci.* – 1999. – Vol. 27. - No.4. – P.1026–1029.
56. Aksenov I.I., Khoroshikh V.M. A low-pressure steady-state arc with a positive anode potential drop and its use in coating processes // *Proc 18 ISDEIV, The Netherland, Eindhoven.* – 1998. – Vol. 2. – P. 577–580.
57. Khoroshikh V.M., Leonov S.A., Belous V.A. Vliyanie geometrii podlozhki na protsess kondensatsii ionno-plazmennyykh pokrytij // *VANT. "Vacuum, chistye metally, sverkhprovodniki".* – 2008. – Vol. 37. – No.1. – P. 72–76.
58. Khoroshikh V.M., Leonov S.A. O kharaktere vliyaniya razlichnykh gazov na protsess kondensatsii pokrytij iz plazmy vakuumnoj dugi // *Fizicheskaya inzheneria poverkhnosti.* – 2009. – Vol. 7. – No.3. – P. 268–272.
59. Leonov S.A., Khoroshikh V.M. Osazhdenie ionno-plazmennyykh pokrytij iz khaotizirovannykh potokov plazmy vakuumnoj dugi // *Preprint KhFTI 2013-4.* – Kharkov: NNTs KhFTI, 2013. – 56 p.

PACS: 47.11.-j, 47.27.ek, 52.25.Dg

NONEQUILIBRIUM KINETICS OF ELECTRON-PHONON SUBSYSTEM OF A CRYSTAL IN STRONG ELECTRIC AND MAGNETIC FIELD AS A BASE OF ELECTRO- AND MAGNETOPLASTIC EFFECTS

V.I. Karas^{*,}, A.M. Vlasenko^{*}, V.N. Voyevodin^{*,**}, V.I. Sokolenko^{*}, V.E. Zakharov^{***,****}**

^{*}*National Science Center «Kharkov Institute of Physics and Technology» of the National Academy of Sciences of Ukraine
1 Academicheskaya, str., Kharkov, 61108, Ukraine*

^{**}*V.N. Karazin Kharkov National University
4 Svoboda, sq., Kharkov, 61022, Ukraine*

^{***}*P.N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences,
53 Leninskij Prospekt, 119991, Moscow, Russia*

^{****}*L.D. Landau Institute for Theoretical Physics of the Russian Academy of Sciences,
142432, Moscow Region, Chernogolovka, Akademika Semenova av., 1-A Russia*

E-mail: karas@kipt.kharkov.ua

Received June 28, 2014

The results of kinetic consideration of nonequilibrium dynamics of electron-phonon system of a crystal in a strong electric field based on a proposed method of numerical solution of a set of Boltzmann equations for electron and phonon distribution functions without expansion of electron distribution function in a series by phonon energy are presented. It has been shown that electromagnetic action excites electron subsystem which by transferring energy to the phonon subsystem creates large amount of short-wave phonons which effectively influence the lattice defects (point, linear, boundaries of different phases) that results in redistribution and decrease of lattice defects density, damage healing, decrease of local peak stress and decrease of construction materials properties degradation level.

KEYWORDS: kinetics, electron, phonon, electric and magnetic fields, lattice defects, peak stress, electroplastic and magnetoplastic effects.

НЕРІВНОВАЖНА КІНЕТИКА ЕЛЕКТРОН-ФОНОННОЇ ПІДСИСТЕМИ КРИСТАЛУ В СИЛЬНОМУ МАГНІТНОМУ ПОЛЯХ ЯК ОСНОВА ЕЛЕКТРО- ТА МАГНІТОПЛАСТИЧНОГО ЕФЕКТИВ

В.І. Карась^{*,}, О.М. Власенко^{*}, В.М. Воєводін^{*,**}, В.І. Соколенко^{*}, В.Є. Захаров^{***,****}**

^{*}*Національний науковий центр «ХФТІ» НАН України
вул. Академічна, 1, 61108, Харків, Україна*

^{**}*Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна
пл. Свободи, 4, 61022, Харків, Україна*

^{***}*Фізичний інститут ім. П.М. Лебедева Російської академії наук,
119991 МСП-1 Москва, Ленінський проспект, б.53, ФІАН*

^{****}*Інститут теоретичної фізики ім. Л.Д. Ландау Російської академії наук,
142432, МО., м. Черноголовка, просп. Академіка Семенова, б. 1-А*

Наведені результати кінетичного розгляду нерівноважної динаміки електрон-фононної системи кристалу в сильному електричному полі на основі запропонованого методу числового розв'язку системи кінетичних рівнянь Больцмана для електронної та фононної функцій розподілу без використання розкладення функції розподілу електронів в ряд по енергії фонону. Показано, що електромагнітна дія збуджує електронну підсистему, створює велику кількість короткохвильових фононів, які ефективно діють на дефекти (точкові, лінійні, межі розділу та виділення різних фаз) кристалічної решітки, що призводить до перерозподілу та зниження густини дефектів кристалічної решітки, заліковування пошкоджень, зменшення локальної пікової напруги та зниження рівня деградації властивостей конструкційних матеріалів.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: кінетика, електрон, фонон, електричне та магнітне поля, дефекти решітки, критична напруга, електропластичний та магнітопластичний ефекти.

НЕРАВНОВЕСНАЯ КИНЕТИКА ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОЙ ПОДСИСТЕМЫ КРИСТАЛЛА В СИЛЬНОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ И МАГНИТНОМ ПОЛЯХ КАК ОСНОВА ЭЛЕКТРО- И МАГНИТОПЛАСТИЧЕСКОГО ЭФФЕКТОВ

В.И. Карась^{*,}, А.М. Власенко^{*}, В.Н. Воєводін^{*,**}, В.И. Соколенко^{*}, В.Е. Захаров^{***,****}**

^{*}*Национальный научный центр «ХФТИ» НАН Украины
ул. Академическая, 1, 61108, Харьков, Украина*

^{**}*Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина
пл. Свободы, 4, 61022, Харьков, Украина*

^{***}*Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
119991 ГСП-1 Москва, Ленинский проспект, д.53, ФИАН*

^{****}*Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук,
142432, МО., г. Черноголовка, просп. Академика Семенова, б. 1-А*

Приведены результаты кинетического рассмотрения неравновесной динамики электрон-фононной системы кристалла в сильном электрическом поле на основе предложенного метода численного решения системы кинетических уравнений Больцмана для электронной и фононной функций распределения без использования разложения функции распределения

электронов в ряд по энергии фонона. Показано, что электромагнитное воздействие возбуждает электронную подсистему, которая, передавая энергию в фононную подсистему, создает большое количество коротковолновых фононов, эффективно воздействующих на дефекты (точечные, линейные, границы раздела и выделения различных фаз) кристаллической решетки, что приводит к перераспределению и снижению плотности дефектов кристаллической решетки, залечиванию повреждений, уменьшению локальных пиковых напряжений и снижению уровня деградации свойств конструкционных материалов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: кинетика, электрон, фонон, электрическое и магнитное поля, дефекты решетки, критическое напряжение, электропластический и магнитопластический эффекты.

In the sixtieth of the XX century a phenomenon of abrupt decrease of plastic deformation resistance of metals in case of excitation of their conductivity electron subsystem by irradiation or conduction of electron current of high density $j=10^8-10^9 \text{ A/m}^2$ was discovered. This phenomenon has been called electroplastic effect (EPE) [1]. This effect is already being applied in industry in the processes of drawing and rolling of metallic products.

Since then soviet and american scientists have carried out series of experiments on metal deformation under electric current influence and also at irradiation of samples by accelerated electrons. In that experiments the manifestation of EPE under different conditions has been studied and also has been ascertained the dependence of the phenomenon intensity on such parameters as:

- kind of the sample being deformed
- temperature
- current density amplitude
- current pulse frequency
- current pulse duration
- current direction
- dopant concentration in sample
- orientation of crystal samples being deformed
- deformation rate

Creation of ab initio theory of electroplastic effect is complicated by that fact that for explanation of the results of the experiments on crystal deformation under the influence of electric current it is necessary to take into account different mechanisms of current influence on the deformation processes. These mechanisms include:

- thermic influence of the current that results in thermal expansion of the sample and also in softening.
- skin effect.
- pinch effect i.e. influence of the pressure of the magnetic field created by current inside of the sample.
- electron-dislocation interaction which appears in momentum and energy transfer to the dislocations from both electrons directly and collective excitations such as plasmons.
- phonon mechanism i.e. electrons which gain energy from the electric field create phonons that excite the dislocation vibrations which can result in dislocation depinning from stoppers.
- magnetic field influence i.e. magnetoplastic effect.

Let us enumerate some experimental regularities of EPE.

In the most pure state EPE can be observed in monocrystals of Zn, Cd, Sn, Pb. If during the deformation one passes through the samples of that materials pulse electric current with density of $j=10^2-10^3 \text{ A/mm}^2$ or if the samples are irradiated by accelerated electrons (with the energy less than atomic knocking-out threshold from the lattice node) in the slip direction, than softening of the samples which exhibits itself in spasmodic drops of deforming stress is revealed [1].

For monocrystals a strongly expressed dependence of the effect magnitude on the orientation of the samples being deformed is observed. At such crystal orientations when the basal slip is complicated the magnitude of deforming stress drop is small and the stress from which plastic deformation begins is large. Maximum stress drop magnitude can be obtained for medium crystal orientations which are characterized by easy basal slip. In this case the stress of the drop start has its minimum [1].

The EPE magnitude dependence on the current density has threshold character, i.e. it starts to become apparent with particular value of the pulse current density. This value depends on the sort of crystals being deformed and also on the temperature and on the deformation rate. For zinc at $T=77 \text{ K}$ it is equal $400-500 \text{ A/mm}^2$ [1].

The temperature dependence is almost absent in a wide range of temperature. For zinc this interval is $77-300 \text{ K}$. For titan the threshold current density magnitude from which the effect begins with cooling from 300 down to 78 K increases by hundreds of A/cm^2 [1].

EPE is sensitive to external factors. The effect intensity is influenced by surface active media. For example specific crystallographic shift of amalgamated zinc monocrystals at the temperature of 300 K and under influence of current pulses with $j=600-1000 \text{ A/mm}^2$, pulse repetition frequency of $0.1...0.5 \text{ Hz}$ and pulse duration of $t_p=10^{-4} \text{ c}$ increases by $50-60\%$ [1].

The dopant presence also influence upon spasmodic metal deformation. As a result of doping the drop magnitude can grow by dozens of percents (up to 100%). Within the scope of relatively small substitutional impurity the magnitude of the effect grows linearly with concentration as it has been shown in the experiments with zinc, doped by cadmium from 10^{-3} up to 10^{-1} at. \% (other impurities content did not exceed $2 \cdot 10^{-3} \text{ at. \%}$). The brittle strength of zinc

crystals grows by 50-70% depending on dopant concentration. This fact can be connected with general increase of the critical shearing stress in the doped crystals [1].

The increase of the current pulse repetition frequency decreases the deforming stress threshold value but also decreases stress drop magnitude. Pulse duration growth at constant amplitude increases the depth of stress drops. This phenomenon was registered both in stress relaxation tests and in creep tests [1].

The main EPE regularities, revealed at monocrystal deformation can be observed in weaker form also in experiments with polycrystal materials. However the EPE magnitude decreases with structure refinement and even disappears in nanocrystal state [2]. Thus EPE is a structure-sensitive phenomenon.

Similar phenomena are observed at irradiation of the material by pulse packets of accelerated electrons. Plasticizing action enhances with the increase of electron energy up to atomic knockout threshold. At further energy increase the intensity of the effect decreases at the expense of radiation strengthening. The combination of current action and irradiation results in the intensification of the metal strength loss effect [1].

Mechanisms, connected with the action of electron wind on dislocations, pinch-effect and also thermal influence of the current on deformation processes are reviewed in detail in the work [1]. It is shown, that they are not sufficient for the quantitative explanation of the EPE.

In this work the phonon mechanism of the influence on dislocation is considered [3, 4].

The purpose of this work is to show that experimentally observed regularities of electroplastic effect can be explained quantitatively if one takes into account the influence of nonequilibrium phonons excited by electrons that gain energy from the electric field upon the dislocations.

ABOUT THE INFLUENCE OF PHONONS ON DISLOCATIONS

Plastic deformation of crystals under the action of external loads in most cases is accomplished by dislocation glide. The main equation describing the kinetics of the process of the plastic deformation – the Orowan modified equation (see for example [5]):

$$\dot{\epsilon}_d = bl\rho_d v_d(\sigma^*), \quad \sigma^* = \sigma - \sigma_i, \quad (1)$$

where $\dot{\epsilon}_d$ is the strain rate, b the Burger's vector, l the mean distance between stoppers, ρ_d the mobile dislocations density, $v_d(\sigma^*)$ the frequency of the stoppers overcoming by dislocations, σ^* the effective shear stress, σ_i the internal shearing stress in the glide plane.

For the case of thermodynamic equilibrium the expression $v_d(\sigma^*, T)$ has the form of:

$$v_d(\sigma^*, T) = v_d^0 \exp\left(-\frac{H(\sigma^*)}{k_B T}\right). \quad (2)$$

The explicit form of the $H(\sigma^*)$ function depends on the potential barrier model. For the consideration of a more general case, i.e. when electron and phonon subsystems can be, generally speaking, not in the state of equilibrium the Landau-Hoffman model will be used [6].

The potential pit has parabolic form:

$$U(x) = \begin{cases} \zeta x^2, & |x| \leq x_{cr} \\ 0, & |x| > x_{cr} \end{cases}, \quad \zeta x_{cr}^2 = U_0. \quad (3)$$

The displacement of the dislocation segment of length L under the stress σ will be described in the approximation of the elastic string vibrations (Granato-Lücke model [6,7]):

$$M \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + B \frac{\partial u}{\partial t} - C \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} = b\sigma + f(t). \quad (4)$$

Here $u(y,t)$ is the displacement of the dislocation line at the point y in the direction x , $M = \frac{\rho b^2}{2}$ is the effective mass of the length unit, ρ the material density, B the coefficient of the dynamic friction force per unit of length, $C = \frac{Gb^2}{2}$ the linear tension of the string, G the shear modulus, $f(t)$ the force of the random pushes that are exerted by crystal upon the unit of dislocation length.

Boundary conditions:

$$u'(0, t) = ku(0, t); \quad -u'(L, t) = ku(L, t); \quad k = \frac{2\zeta}{C}. \quad (5)$$

The equation is linear, so its solution can be written as a sum

$u(y, t) = u_{st}(y) + u_{osc}(y, t)$, where $u_{st}(y)$ is the static deflection, caused by external stress σ , and $u_{osc}(y, t)$ the oscillations under the action of a random force.

$$u_{st}(y) = \frac{by(L-y)}{2C} + \frac{bL\sigma}{2Ck}; \quad u_{osc}(y, t) = \sum_{n=1}^N Q_n(t) \left(\sin(q_n y) + \frac{q_n}{k} \cos(q_n y) \right); \quad \text{ctg}(q_n y) = \frac{q_n^2 - k^2}{2q_n k} \quad (6)$$

The quantity of $Q_n(t)$ satisfies the following equation:

$$M\ddot{Q}_n(t) + B\dot{Q}_n(t) + M\omega_n^2 Q_n(t) = f_n(t); \quad \omega_n^2 = q_n^2 \frac{C}{M} \quad (7)$$

Let us consider a "fixing point" at $y=0$. Let the segment lengths on both sides of it be equal to L . Then the total deflection at the "fixing point" is equal to:

$$\tilde{u}(0, t) = 2u_{st}(y) + 2u_{osc}(y, t) = \tilde{u}_{st}(y) + \tilde{u}_{osc}(y, t) \quad (8)$$

The case of a random force was considered in the work [8]. We shall now provide some of the calculations for the reference purpose. If at some time moment occurs a random event such that $\delta\tilde{u}(0, t) \geq \delta\tilde{u}_{cr}$ then the condition of obstacle overcoming in the direction on the loading action will be satisfied. Let $f_n(t)$ be a stationary Gauss process. Since the equation (7) is linear, $Q_n(t)$ and correspondingly $\tilde{u}(0, t)$ is also stationary Gauss process for which the mean number of exceeding a particular quantity $\delta\tilde{u}_{cr}$ per unit of time is equal to:

$$v = \frac{1}{2\pi} \sqrt{-\frac{\Psi''(0)}{\Psi(0)}} \exp\left\{-\frac{\delta\tilde{u}_{cr}^2}{2\Psi(0)}\right\}, \quad (9)$$

$$\Psi(\tau) = 2 \sum_{n=1}^{\bar{n}} \frac{q_n^2}{k^2} \overline{Q_n(t)Q_n(t+\tau)} \equiv 2 \sum_{n=1}^{\bar{n}} \frac{q_n^2}{k^2} \psi(\tau), \quad (10)$$

$$\delta\tilde{u}_{cr} = x_{cr} - \frac{bL\sigma}{ck} = x_{cr} \left(1 - \frac{\sigma}{\sigma_{cr}}\right), \quad \sigma_{cr} \equiv \frac{ckx_{cr}}{bL}, \quad (11)$$

where $\Psi(\tau)$ is the random process $\delta\tilde{u}(0, t)$ correlation function expressed by means of random process $Q_n(t)$ correlation function $\psi(\tau)$; $\Psi''(0)$ is the second derivative with respect to τ at $\tau = 0$. For the Fourier components $(Q_n)_\omega$ of $Q_n(t)$ we can write:

$$\psi(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} (Q_n)_\omega^2 e^{-i\omega\tau} d\omega, \quad (12)$$

where the definition of the quantity $(Q_n)_\omega^2$ is given by the relation

$$\overline{(Q_n)_\omega (Q_n)_{\omega'}} = (Q_n)_\omega^2 \delta(\omega + \omega') \quad (13)$$

Each harmonic can be formally considered as an independent vibrator with friction χ and frequency ω_n :

$$m\ddot{Q} + \chi\dot{Q} + m\omega_n^2 Q = F, \quad (14)$$

where m is the proportionality coefficient between the generalized momentum and velocity \dot{Q} , χ the friction coefficient, F the random force [9].

$$m = M \frac{L\xi_n}{2}, \quad \chi = B \frac{L\xi_n}{2}, \quad F = f_n \frac{L\xi_n}{2}, \quad \xi_n = 1 - \frac{2}{kL} + \frac{q_n^2}{k^2} \quad (15)$$

So for the Fourier component we obtain the following formula:

$$(Q_n)_\omega^2 = \frac{(F_\omega)^2}{m^2(\omega_n^2 - \omega^2)^2 + \chi^2\omega^2} \quad (16)$$

Random force spectral density can be found from the expression [8]:

$$(F_\omega)^2 = \frac{\chi}{\pi} \hbar\omega \left(\frac{1}{2} + N(\omega)\right). \quad (17)$$

Hence to estimate the force exerted by phonons upon dislocations one must first find the phonon distribution function $N(\omega)$.

KINETIC EQUATIONS

In some works on electron-phonon subsystem dynamics in metal films an assumption about Fermi form of isotropic part of the electron distribution function with time-dependent temperature was used [10]. In the given work we do not make that assumption and thus the distribution functions can be, generally speaking, not thermodynamically equilibrium. In such case the behavior of electrons and phonons is described by means of distribution functions.

For the description of the electron-phonon system nonequilibrium dynamics it is necessary to solve a set of kinetic Boltzmann equations for electron and phonon distribution functions correspondingly. For electron distribution function the Boltzmann equation has the form of:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} + \frac{\partial f}{\partial \vec{p}} \frac{d\vec{p}}{dt} = I_{ee} + I_{ep} + I_{ed}, \quad (18)$$

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = e\{\vec{E}(\vec{r}, t) + [\vec{v}, \vec{B}(\vec{r}, t)]\}, \quad (19)$$

where \vec{v} is the velocity, \vec{p} the momentum, t the time, \vec{r} the radius-vector, \vec{E} the electric field strength, \vec{B} the magnetic induction. Hereinafter we consider the magnetic field absent. The electric field and also electron distribution function we consider spatially uniform.

- I_{ee} is the electron-electron collision integral. In the general case of quantum mechanics it has the form of [11-13]:

$$I_{ee} = \frac{2}{(2\pi\hbar)^6} \int d\vec{p}_1 d\vec{p}_2 d\vec{p}_3 W(\vec{p}, \vec{p}_1 | \vec{p}_2, \vec{p}_3) [f(\vec{p}_2)f(\vec{p}_3)(1-f(\vec{p}_1))(1-f(\vec{p})) - f(\vec{p})f(\vec{p}_1)(1-f(\vec{p}_2))(1-f(\vec{p}_3))] \delta(\varepsilon + \varepsilon_1 - \varepsilon_2 - \varepsilon_3) \delta(\vec{p} + \vec{p}_1 - \vec{p}_2 - \vec{p}_3), \quad (20)$$

where $f(\vec{p})$ are the occupation numbers, $W(\vec{p}, \vec{p}_1 | \vec{p}_2, \vec{p}_3)$ the matrix element that describes screened coulomb interaction.

$$W(\vec{p}, \vec{p}_1 | \vec{p}_2, \vec{p}_3) = (2\pi\hbar)^3 2e^4 (|\vec{p}_1 - \vec{p}_3|^2 + a_1^2)^{-2} \quad (21)$$

where $W(\vec{p}, \vec{p}_1 | \vec{p}_2, \vec{p}_3)$ the transition probability for electrons with momenta \vec{p}_2 and \vec{p}_3 to the state with momenta \vec{p} and \vec{p}_1 as a result of collision. For relatively small electric fields the contribution from electron-electron collisions is essentially less than the contribution from the electron-phonon interaction and thus hereinafter at small time intervals electron-electron collisions will not be taken into account.

I_{ep} is the electron-phonon collision integral [11-13]:

$$I_{ep} = \int d\vec{q} w(\vec{q}) \{ \delta(\varepsilon(\vec{p} + \vec{q}) - \varepsilon(\vec{p}) - \hbar\Omega(\vec{q})) [f(\vec{p} + \vec{q})(1 - f(\vec{p})) (N(\vec{q}) + 1) - f(\vec{p})(1 - f(\vec{p} + \vec{q})) N(\vec{q})] + \delta(\varepsilon(\vec{p} - \vec{q}) - \varepsilon(\vec{p}) + \hbar\Omega(\vec{q})) [f(\vec{p} - \vec{q})(1 - f(\vec{p})) N(\vec{q}) - f(\vec{p})(1 - f(\vec{p} - \vec{q})) (N(\vec{q}) + 1)] \} \quad (22)$$

I_{ed} is the electron-impurity and electron-defect collision integral. It can be obtained by setting in I_{ep} $\hbar\Omega = 0$ and $N=0$.

$$I_{ed} = \int d\vec{p} \hat{w}_{ed}(\vec{p} - \vec{p}) \delta(\varepsilon(\vec{p}) - \varepsilon(\vec{p})) \{ f(\vec{p}) - f(\vec{p}) \} \quad (23)$$

Phonon distribution function also satisfies the kinetic equation:

$$\frac{\partial N(\vec{q})}{\partial t} + \vec{v}_q \frac{\partial N(\vec{q})}{\partial \vec{r}} = I_{pe} + I_{pp} + I_{pd}, \quad (24)$$

I_{pe} is the phonon-electron collision integral [11-13]:

$$I_{pe} = \int d\vec{p} w(\vec{q}) \{ \delta(\varepsilon(\vec{p} + \vec{q}) - \varepsilon(\vec{p}) - \hbar\Omega(\vec{q})) [f(\vec{p} + \vec{q})(1 - f(\vec{p})) (N(\vec{q}) + 1) - f(\vec{p})(1 - f(\vec{p} + \vec{q})) N(\vec{q})] \} \quad (25)$$

The phonon-phonon and phonon-defect collision integrals in τ -approximation have the following form:

I_{pp} is the phonon-phonon collision integral.

$$I_{pp} = -v_{pp}(\vec{q}) [N(\vec{q}) - N_T(\vec{q})], \quad v_{pp}(q) = v_{pp0} q^2; \quad v_{pp0} = \frac{T^3 s}{a_c T_{DM}^4 M_c} \quad (26)$$

I_{pd} is the phonon-defect collision integral

$$I_{pd} = -v_{pd}(\vec{q}) [N(\vec{q}) - \overline{N(\vec{q})}] \quad (27)$$

where $N_T(\vec{q}) = \left[\exp\left(\frac{\hbar\Omega}{T}\right) - 1 \right]^{-1}$ is the thermodynamically equilibrium phonon distribution function – Bose-Einstein function; $\overline{N}(q) = \frac{1}{4\pi} \int N(\vec{q}) d\Omega$ is the phonon distribution function, averaged over the angles.

Since electron-impurity, electron-defect and electron-phonon collisions result in distribution function isotropization, we shall search it in the form of the sum of isotropic function and small anisotropic additive:

$$f(\vec{p}, t) = f(\varepsilon(p), t) + \vec{f}_1(\varepsilon(p), t) \frac{\vec{p}}{p}, \quad (28)$$

$$w(q) = w_0 q; \quad w_0 = \frac{\varepsilon_{1A}^2}{2(2\pi\hbar)^2 \hbar p_s}; \quad \hbar\Omega(q) = sq. \quad (29)$$

After concretization we obtain:

$$I_{pp} = -v_{pd0} q [N(\vec{q}) - N_T(\vec{q})], \quad (30)$$

$$I_{ed} \left\{ \vec{f}_1(\varepsilon) \frac{\vec{p}}{p} \right\} = -v_{ed} \vec{f}_1(\varepsilon) \frac{\vec{p}}{p}, \quad (31)$$

where $v_{ed} = 3 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ is the electron-impurity collision frequency which in the given case (of low temperatures) determines the electron distribution function isotropization.

$$I_{ep} \left\{ \vec{f}_1(\varepsilon) \frac{\vec{p}}{p} \right\} = -v(\varepsilon) \vec{f}_1(\varepsilon) \frac{\vec{p}}{p}; \quad v(\varepsilon) = \frac{\pi w_0}{\sqrt{m\varepsilon^3}} \int_0^{\sqrt{8m\varepsilon}} dq q^3 \left[N(q) + \frac{1}{2} \right]. \quad (32)$$

For anisotropic additive we have the equation:

$$\frac{\partial \vec{f}_1}{\partial t} \frac{\vec{p}}{p} - e \vec{E} v \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \frac{\vec{p}}{p} = -v_{ed} \vec{f}_1(\varepsilon) \frac{\vec{p}}{p}, \quad (33)$$

Collisions with defects and impurities occur very often, i.e. at a time scale that is small compared to characteristic time of interaction of phonons with electrons, therefore the anisotropic additive can be considered stationary and also spatially uniform.

As a result we obtain the final set of two equations for isotropic electron and acoustic phonon distribution functions [3,4,14] which has to be solved without electron distribution function Taylor expansion:

$$\frac{\partial f}{\partial t} - 4\Delta \tilde{\varepsilon} \frac{1}{\tilde{\varepsilon}^{1/2}} \frac{\partial}{\partial \tilde{\varepsilon}} \left[\tilde{\varepsilon}^2 \frac{\partial f}{\partial \tilde{\varepsilon}} \right] = \frac{1}{8} \alpha^{-\frac{5}{2}} \left\{ \frac{1}{\sqrt{\tilde{\varepsilon}}} \int_0^{\tilde{\varepsilon}} d\tilde{\varepsilon}_{ph} \tilde{\varepsilon}_{ph}^2 [f(\tilde{\varepsilon} - \tilde{\varepsilon}_{ph}) N(\tilde{\varepsilon}_{ph}) + f(\tilde{\varepsilon})(f(\tilde{\varepsilon} - \tilde{\varepsilon}_{ph}) - N(\tilde{\varepsilon}_{ph}) - 1)] + \frac{1}{\sqrt{\tilde{\varepsilon}}} \int_0^{\tilde{\varepsilon}+} d\tilde{\varepsilon}_{ph} \tilde{\varepsilon}_{ph}^2 [f(\tilde{\varepsilon} + \tilde{\varepsilon}_{ph}) [N(\tilde{\varepsilon}_{ph}) + 1] - f(\tilde{\varepsilon})(f(\tilde{\varepsilon} + \tilde{\varepsilon}_{ph}) + N(\tilde{\varepsilon}_{ph}))] \right\}, \quad (34)$$

$$\frac{\partial N(\vec{q})}{\partial t} = \frac{1}{2\alpha} \int_{\varepsilon_0}^{\infty} d\tilde{\varepsilon} \left[(f(\tilde{\varepsilon} + \tilde{\varepsilon}_{ph}) - f(\tilde{\varepsilon})) N(\tilde{\varepsilon}_{ph}) + f(\tilde{\varepsilon} + \tilde{\varepsilon}_{ph})(1 - f(\tilde{\varepsilon})) \right]. \quad (35)$$

Here the following designations are used:

$$\alpha = \frac{ms^2}{2k_B T_e}; \quad \Delta \tilde{\varepsilon} = \frac{e^2 E^2 \tau_{ep0}}{6m v_{ed} k_B T_e}; \quad \tilde{\varepsilon} = \frac{\varepsilon}{k_B T_e}; \quad \tilde{\varepsilon}_{ph} = \frac{\varepsilon_{ph}}{k_B T_e}; \quad \tilde{t} = \frac{t}{\tau_{ep0}}; \quad \tau_{ep0} = \frac{(2\pi\hbar)^3 \hbar p}{\pi m^3 s \varepsilon_{1A}^2} = 3.446 \cdot 10^{-7} \text{ s}.$$

Integration limits which are obtained with respect to the energy conservation law are correspondingly equal:

$$\varepsilon_- = \min \left[4(\sqrt{\varepsilon\alpha} - \alpha), \tilde{\varepsilon}_{phD} \right], \varepsilon_+ = \min \left[4(\sqrt{\varepsilon\alpha} + \alpha), \tilde{\varepsilon}_{phD} \right], \varepsilon_0 = \frac{\tilde{\varepsilon}_{ph}^2}{16\alpha} - \frac{\tilde{\varepsilon}_{ph}}{2} + \alpha \quad (36)$$

Distribution functions of electrons $f(\varepsilon)$ and phonons $N(q)$ are dimensionless quantities that satisfy the following normalizing conditions:

$$\frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \int_0^\infty \varepsilon^{\frac{1}{2}} f(\varepsilon) d\varepsilon = n, \quad (37)$$

where n is the electron density in the valence band (for metals also conductivity band as it is only partially filled).

$$\frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{1}{\hbar^3} \right) \int_0^{q_D} q^2 N(q) dq < \infty, \quad (38)$$

where q_D is the Debye phonon momentum which is determined by the equality:

$$q_D = \frac{\pi\hbar}{a}. \quad (39)$$

All quantities are taken for nickel: $s=2.96 \cdot 10^5$ cm/s is the transverse sound velocity, $n=2.5 \cdot 10^{22}$ cm⁻³ the conductivity electron concentration, $a=3.5 \cdot 10^{-8}$ cm the lattice constant, $\rho_s^{-1} = 0.333 \cdot 10^6$ Sm/cm.

Thermodynamically equilibrium electron energy distribution function is the Fermi-Dirac function:

$$f_0(\varepsilon) = \left[\exp \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_F}{k_b T_e} \right) + 1 \right]^{-1}. \quad (40)$$

For nickel $\varepsilon_F=5 \cdot 10^{-19}$ J.

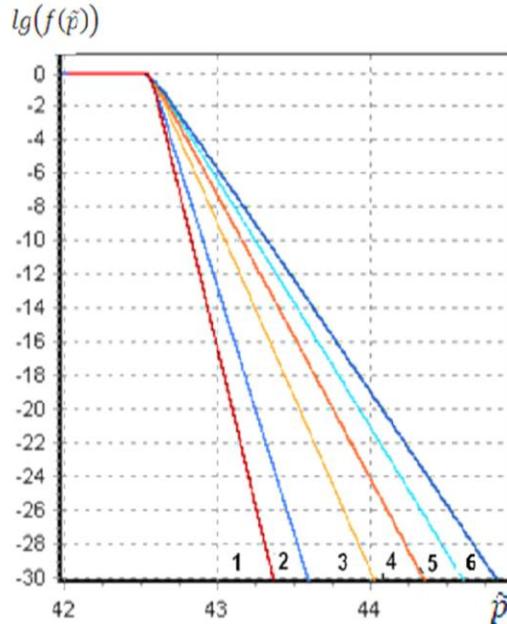


Fig. 1. Dependence of the electron distribution function decimal logarithm on dimensionless electron momentum \tilde{p} at $E=1.68$ V/cm for different time moments $t=0; 1; 5; 10; 15; 20$. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5, 6.

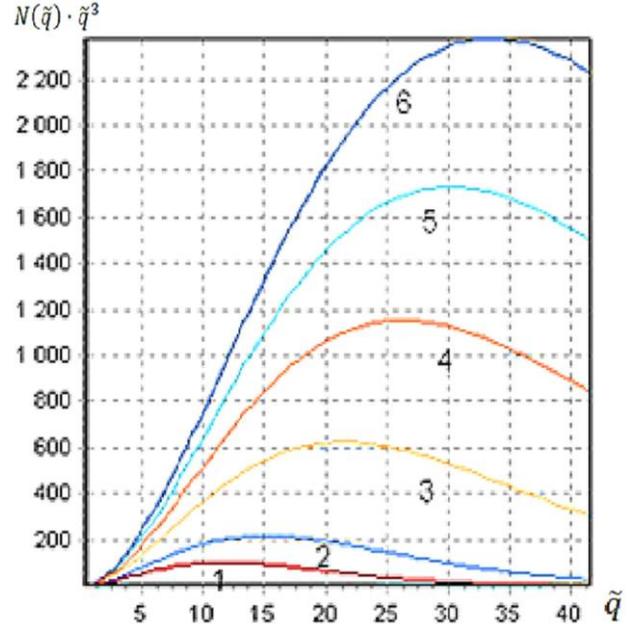


Fig. 2. Dependence of the phonon distribution function multiplied by dimensionless phonon momentum \tilde{q} cubed on dimensionless phonon momentum \tilde{q} at $E=1.68$ V/cm for different time moments $t=0; 1; 5; 10; 15; 20$. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5, 6.

NUMERICAL SOLUTION OF THE KINETIC EQUATIONS SET FOR ELECTRON AND PHONON DISTRIBUTION FUNCTIONS AND DISCUSSION OF THE RESULTS

For the numerical solution of the equation set (34-35) the finite difference method of the first order approximation over time and second order over space coordinates was used. The system (34-35) was presented by the following set of difference equations [15]:

$$\frac{f_i^{v+1} - f_i^v}{\tilde{\tau}} = 6\Delta\tilde{\varepsilon} \frac{f_{i+1}^{v+1} - f_{i-1}^{v+1}}{2h_{\tilde{\varepsilon}}} + 4\tilde{\varepsilon}_i \Delta\tilde{\varepsilon} \frac{f_{i+1}^{v+1} - 2f_i^{v+1} + f_{i-1}^{v+1}}{h_{\tilde{\varepsilon}}^2} + J_i, \quad (41)$$

$$J_i = \frac{1}{8\sqrt{\tilde{\varepsilon}_1\alpha^5}} \frac{1}{2} \left\{ \sum_{j=0} h_{\tilde{\varepsilon}_{ph}} \tilde{\varepsilon}_{ph_j}^2 [f_k^v N_j + f_i^v (f_k^v - N_j - 1)] + \sum_{j=0} h_{\tilde{\varepsilon}_{ph}} \tilde{\varepsilon}_{ph_j}^2 [f_i^v (N_j + 1) - f_i^v (f_i^v + N_j)] + \sum_{j=0} h_{\tilde{\varepsilon}_{ph}} \tilde{\varepsilon}_{ph_{j+1}}^2 [f_{k-1}^v N_{j+1} + f_i^v (f_{k-1}^v - N_{j+1} - 1)] + \sum_{j=0} h_{\tilde{\varepsilon}_{ph}} \tilde{\varepsilon}_{ph_{j+1}}^2 [f_{i+1}^v (N_{j+1} + 1) - f_i^v (f_{i+1}^v + N_{j+1})] \right\}, \quad (42)$$

$$\frac{N_j^{v+1} - N_j^v}{\tilde{\tau}} = \frac{1}{2\alpha_2} \sum_i h_{\tilde{\varepsilon}} [(f_k^v - f_i^v) N_j^v + f_k^v (1 - f_i^v) + (f_{k+1}^v - f_{i+1}^v) N_j^v + f_{k+1}^v (1 - f_{i+1}^v)], \quad (43)$$

$$f_k^v = f(\tilde{\varepsilon}_i - \tilde{\varepsilon}_{ph_j}), \quad f_l^v = f(\tilde{\varepsilon}_i + \tilde{\varepsilon}_{ph_j}). \quad (44)$$

The summation limits are determined from (26). Grid steps were chosen in such way that:

$$\tilde{\varepsilon}_i - \tilde{\varepsilon}_{ph_j} = \tilde{\varepsilon}_k, \quad \tilde{\varepsilon}_i + \tilde{\varepsilon}_{ph_j} = \tilde{\varepsilon}_l \quad (45)$$

Here k and l are natural numbers. As a result of calculations electron and phonon distribution functions have been found.

On the Fig. 1 and Fig. 3 is presented the dependence of the electron distribution function decimal logarithm on dimensionless electron momentum for different time moments and two values of the electric field strength: 1.68 V/cm and 33.6 V/cm. On the Fig. 2 and 4 is presented the dependence of the phonon distribution function multiplied by dimensionless phonon momentum cubed on the dimensionless momentum. The curves illustrate uninterrupted growth of the number of high-energy electrons and phonons with time. The curves for the time $t=0$ correspond to equilibrium distribution functions. In particular, phonon distribution function multiplied by dimensionless phonon momentum cubed for the electric field strength of 33.6 V/cm at the time moment ($t=1.0$) of an order less than for the field of 1.68 V/cm ($t=10$) is more than 66 times greater. For the same values of t and electric field strengths the values of the electron momentum at which the electron distribution function equals to 10^{-30} differ in 1.23 times.

For clearness on Fig. 5 is presented a dependence of the phonon distribution function on the dimensionless momentum at electric field strength $E=16.8$ V/cm for different time moments: $t=0; 0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.25$.

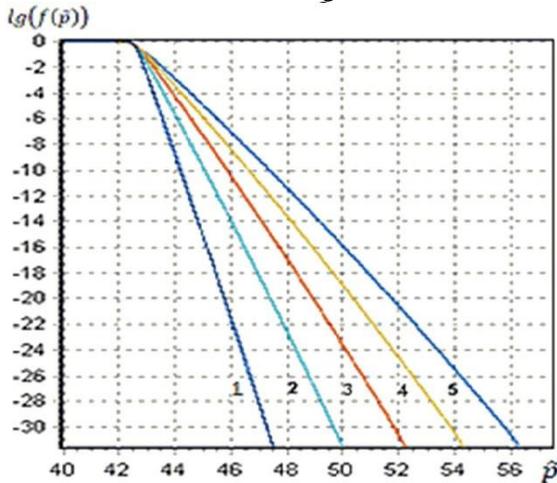


Fig. 3. Dependence of the electron distribution function decimal logarithm on dimensionless electron momentum at $E=33.6$ V/cm for different time moments: $t=0; 0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.25$. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5.

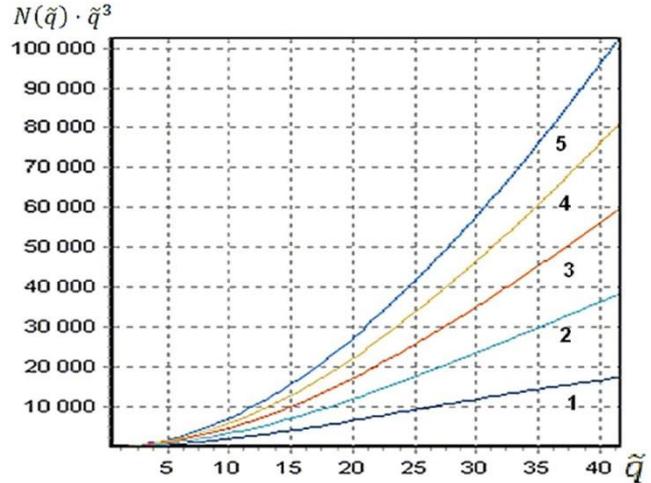


Fig. 4. Dependence of the phonon distribution function multiplied by dimensionless phonon momentum cubed on dimensionless phonon momentum at $E=33.6$ V/cm for different time moments: $t=0; 0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.25$. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5.

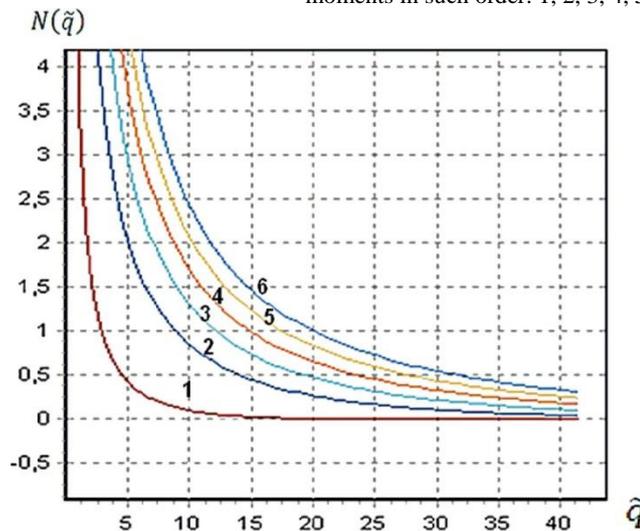


Fig. 5. Dependence of the phonon distribution function on the dimensionless phonon momentum. $E = 16.8$ V/cm for different time moments: $t=0; 0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.25$. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5, 6.

For estimation of the influence on the plastic deformation, let us plot the dependence:

$$\frac{(F_{\tilde{q}})^2}{(F_{\tilde{q}_0})^2} = \frac{\left(\frac{1}{2} + N(\tilde{q})\right)}{\left(\frac{1}{2} + N_0(\tilde{q})\right)} \quad (46)$$

where $N_0(\tilde{q})$ is the Bose-Einstein function for the temperature of 32K, i.e. 12K more than the initial temperature. In the most part of the experiments [1] the heating did not exceed 0.5-3K. $N(\tilde{q})$ is the phonon distribution function found as a result of numerical calculations.

From Fig. 6 and Fig. 7 one can see that the force exerted by phonons upon dislocation is greater than in case of simple heating and it has trend to grow with time.

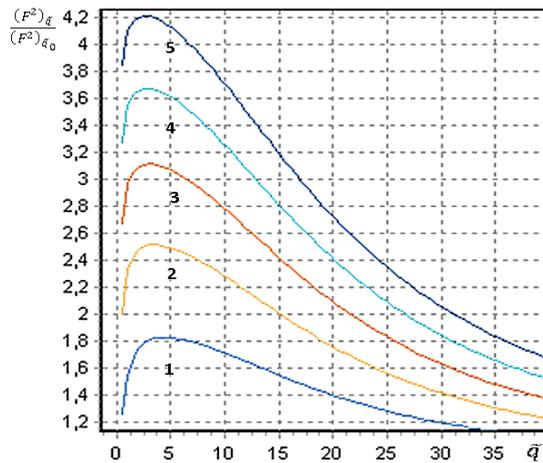


Fig. 6. Dependence of the ratio $\frac{(F_{\tilde{q}})^2}{(F_{\tilde{q}_0})^2}$ on the dimensionless phonon momentum for different time moments: $t=0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.25$ at $E=16.8$ V/cm. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5.

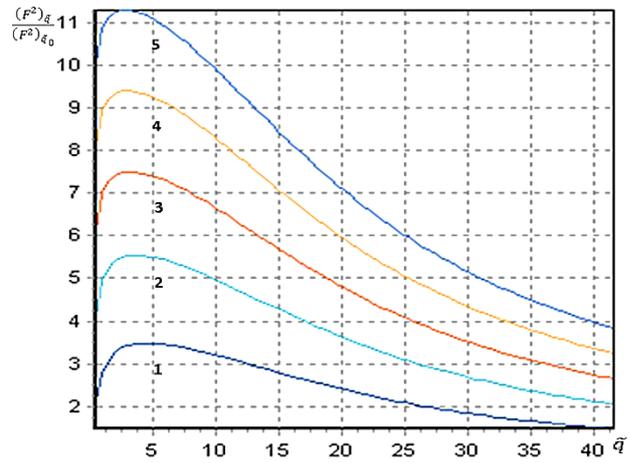


Fig. 7. Dependence of the ratio $\frac{(F_{\tilde{q}})^2}{(F_{\tilde{q}_0})^2}$ on the dimensionless phonon momentum for different time moments: $t=0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.25$ at $E=33.6$ V/cm. The curves correspond to these time moments in such order: 1, 2, 3, 4, 5.

COMPARISON WITH THE EXPERIMENTAL RESULTS

Fig. 8 presents the dependence in double logarithmic scale of the phonon distribution function multiplied by dimensionless phonon momentum cubed on dimensionless momentum for different situations:

- thermodynamic equilibrium phonon distribution functions at 20K (curve 1) and 32K (curve 2), correspondingly;
- the nonequilibrium phonon distribution function which was obtained as a result of numerical calculations at the electric field strength $E=16.8$ V/cm for the time moment of $t=2.5$ (curve 3).

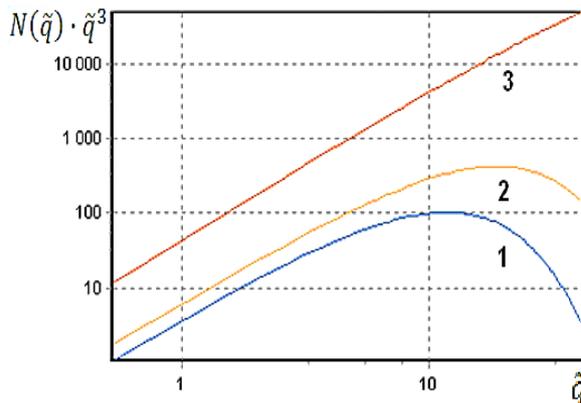


Fig. 8. Dependence of the phonon distribution function multiplied by dimensionless phonon momentum cubed on dimensionless electron momentum. The curve 1 and curve 2 refer to the equilibrium state at 20K and 32K correspondingly. Curve 3 is for the phonon distribution function obtained as a result of numerical calculations the electric field of $E=16$ V/cm at the time moment of $t=2.5$.

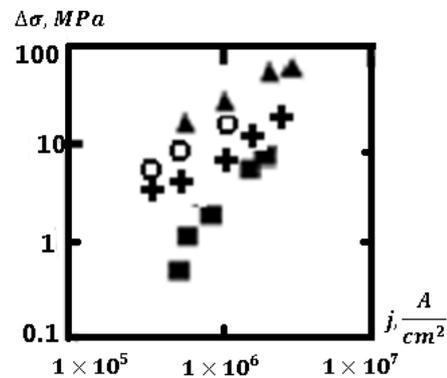


Fig. 9. Dependence of the loading drop [MPa] on the current density [A/cm^2]. Squares are the experimental data provided by Troitsky [1]. Triangles correspond to the experiments of Lebedev [16]. Crosses correspond to our results obtained on the base of Granato-Lücke and Landau-Hoffman model with phonon distribution function at time moment $t=2.5\mu s$ for electric field strength of 1.6;2;4;8;16;V/cm, empty circles – results for time moment $t=15\mu s$ for electric field strength of 1.6;2;4 V/cm.

The value of the loading drop has been found in the following order. First of all we substituted the obtained values of phonon distribution function into the formula (17) and found the random force spectral density. Then we have put this result into (16) and found $(Q_n)_\omega^2$.

$$(Q_n)_\omega^2 = \frac{\frac{\chi}{\pi} \hbar \omega \left(\frac{1}{2} + N(\omega)\right)}{m^2(\omega_n^2 - \omega^2)^2 + \chi^2 \omega^2}, \quad (47)$$

Knowing $(Q_n)_\omega^2$ we calculated the correlation function $\psi(0)$ and it's second derivative using the formula (12).

$$\psi(0, N(\omega)) = \lim_{\tau \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\frac{\chi}{\pi} \hbar \omega \left(\frac{1}{2} + N(\omega)\right)}{m^2(\omega_n^2 - \omega^2)^2 + \chi^2 \omega^2} e^{-i\omega\tau} d\omega, \quad \psi''(0, N(\omega)) = - \lim_{\tau \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\frac{\chi}{\pi} \hbar \omega^3 \left(\frac{1}{2} + N(\omega)\right)}{m^2(\omega_n^2 - \omega^2)^2 + \chi^2 \omega^2} e^{-i\omega\tau} d\omega, \quad (48)$$

After that we found $\Psi(\tau)$ and $\Psi''(0)$ using (10).

$$\Psi(0, N(\omega)) = 2 \sum_{n=1}^{\tilde{n}} \frac{q_n^2}{k^2} \psi(0, N(\omega)), \quad (49)$$

$$\Psi''(0, N(\omega)) = 2 \sum_{n=1}^{\tilde{n}} \frac{q_n^2}{k^2} \psi''(0, N(\omega)), \quad (50)$$

After substituting (9) into (1) we have the following relation which allows us to find $\delta\tilde{u}_{cr}^2$ when all other quantities are known:

$$\dot{\epsilon}_d = b l \rho_d \frac{1}{2\pi} \sqrt{-\frac{\Psi''(0, N(\omega))}{\Psi(0, N(\omega))}} \exp\left\{-\frac{\delta\tilde{u}_{cr}^2}{2\Psi(0, N(\omega))}\right\}, \quad (51)$$

$$\delta\tilde{u}_{cr}(N(\omega)) = \sqrt{2\Psi(0, N(\omega)) \ln\left(\frac{b l \rho_d}{2\pi \dot{\epsilon}_d} \sqrt{-\frac{\Psi''(0, N(\omega))}{\Psi(0, N(\omega))}}\right)} \quad (52)$$

Finally we find σ from (11):

$$\sigma = \sigma_{cr} \left(1 - \frac{\delta\tilde{u}_{cr}(N(\omega))}{x_{cr}}\right), \quad (53)$$

$$\Delta\sigma(N(\omega)) = \sigma_{ext} - \sigma(N(\omega)) \quad (54)$$

The comparison between the calculation results and experimental data was made for nickel at following values of experimental parameters: the applied external stress $\sigma_{ext} = 68.885$ MPa, $\dot{\epsilon}_d = 1.19 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $b = 3.52 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$, and the product of $l\rho_d = 435 \text{ cm}^{-1}$, $U_0 = 3.34 \cdot 10^{-19} \text{ J}$, $x_{cr} = 0.2b$, $L = 3.5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$, $B = 2 \cdot 10^{-10} \text{ N}\cdot\text{s}\cdot\text{cm}^{-2}$.

The Fig. 9 clearly demonstrates that our approach gives results that are of the same order with experimental data. The expected loading drop in case of heating under the conditions of thermodynamic equilibrium is several orders less than the loading drop observed in experiments. That is why we don't even put it on our figure. The loading drop that was calculated using the obtained data must be considered as lower estimate because the time moments at which the calculation was finished are several times less than the current pulse duration in the experiments.

CONCLUSIONS

In the given work a kinetic consideration of nonequilibrium dynamics of the electron-phonon system of a crystal in a strong electric field has been carried out.

A method of numerical solution of kinetic Boltzmann equations system for electron and phonon distribution function without expansion of the electron distribution function in a series by phonon energy has been proposed.

It has been shown that under the influence of a strong electric field the electron distribution function becomes nonequilibrium in the vicinity of Fermi energy and the influence of electron-phonon collisions becomes commensurable with the influence of the field. Phonon distribution function gets "heated" while remaining nonequilibrium in the region of long-wave phonons.

Basing on the Granato-Lücke and Landau-Hoffman model and using the calculated phonon distribution function it has been shown that the force of the action of the phonons on the dislocations is greater than it would be in case of thermodynamic equilibrium at heating by 12K.

More early results were defined more precisely. The conditions of applicability of the Taylor expansion of the electron distribution function by the phonon energy depending on temperature have been obtained.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work is financially supported in part by the National Academy of Sciences of Ukraine under the contract 61-02-14 within frame collaboration between the National Academy of Sciences of Ukraine and Russian Foundation for Basic Research.

We also express our gratitude to A.A. Parkhomenko for valuable comments during the discussion of this work.

REFERENCES

1. Spitsyn V.I., Troitskiy O.A. Elektroplasticheskaya deformatsiya metallov. - M: Nauka, 1985. - 158 p.

2. Stolyarov V.V. Elektroplasticheskiy effect v titanovykh splavakh. //Vestnik nauchno-tehnicheskogo razvitiya. – 2013. – No.(67). - P. 35-39.
3. Karas V.I., Potapenko I.F. Dinamika neravnovesnoy electron-fononnoy sistemy dlya poluprovodnikov i metallov v silnom elektricheskom pole. // Voprosy atomnoy nauki i tehniki. Seriya: Fizika radiatsionnykh povrezhdeniy i radiatsionnoye materialovedeniye. – 2009. – No.4-2(62). - P. 150-157.
4. Zakharov V.E., Karas V.I. Nonequilibrium Kolmogorov-type particle distributions and their applications. //Physics-Uspekhi. – 2013. - Vol.56. - No.1. - P. 49-78.
5. Nekyudov I.M., Kamyshanchenko N.V. Fizicheskiye osnovy prochnosti i plastichnosti metallov. Chast 2: Defekty v kristallakh. – Moskva-Belgorod: Izd-vo Belgorodskogo GU, 1997. – 158 s.
6. Landau A.I., Gofman Yu.I. Analiz protsessa vyhoda dislokatsii iz parabolicheskoy yamy na osnove stohasticheskogo metoda Lanzhevena. // Fizika tverdogo tela. – 1974. - Vol. 16. - No.11. - P. 3427-3434.
7. Granato A., Lücker K. Theory of mechanical damping due to dislocations // J. Appl. Phys. – 1956. – Vol. 27. – P. 583-593.
8. Dubinko V.I., Karas V.I., Klepikov V.F., Ostapchuk P.N., Potapenko I.F. Modelirovaniye povysheniya plastichnosti materialov pod deystviyem impulsov elektricheskogo toka // Voprosy atomnoy nauki i tehniki. Seriya: Fizika radiatsionnykh povrezhdeniy i radiatsionnoye materialovedeniye. –2009. - No.4-2(62). - P.158-166.
9. Kaganov M.I., Kravchenko V.Ya., Natsik V.D. Dislocation dragging by electrons in metals // Physics-Uspekhi. – 1974. - Vol.16, iss. 6. - P. 878-891.
10. Perrin N., Budd H. Phonon generation by Joule heating in metal films // Phys. Rev. Let.– 1972.- Vol. 28.. - No.26.- P. 1701-1703.
11. Bass F.G., Gurevich Yu.G. Goryachiye elektrony i silniye elektromagnitniye volny v plazme poluprovodnikov i gazovogo razryada. - M.: Nauka, glavnaya redaktsiya fiziko-matematicheskoy literatury, 1975. – 399 s.
12. Silin V.P. Vvedeniye v kineticheskuyu teoriyu gazov. Izdanie 3, ispravlennoe i dopolnennoe. - M.: Knizhnyi dom “Librokom”, 2013. – 344 p.
13. Lifshits E.M., Pitayevskiy L.P. Fizicheskaya kinetika. - M.: Fizmatlit, 2002. - 528 p.
14. Karas V.I., Potapenko I.F., Vlasenko A.M. Kinetics of nonequilibrium electron-phonon system for semiconductors and metals in a strong electric field // Problems of Atomic Science and Technology. Series: Plasma Electronics and New Acceleration Methods. – 2013. - No.(86). - P. 272-278.
15. Karas V.I., Vlasenko A.M., Sokolenko V.I. Neravnovesnaya kinetika elektron-fononnoy podsistemy kristalla v silnom elektricheskom i magnitnom polyah kak osnova elektro- i magnitoplasticheskogo effektov. Materialy 55-y Mezhdunarodnoy konferentsii “Aktualniye problemy prochnosti”. 9-13 iyunya 2014 goda. Kharkov, Ukraina: Sbornik materialov / Kharkov: NNTs KhFTI, 2014. – S. 14.
16. Lebedev V.P., Savich S.V. Vozdeystviye impulsov elektricheskogo toka plotnostyu do $2.3 \cdot 10^{10}$ A·m⁻² na deformatsiyu medi. // Visnyk KhNU, seriya “Fizyka”. – 2011. – No.962, vyp. 15. - P. 88-91.

PACS: 25.20-x

CORRELATION OF SECONDARY PARTICLES IN THE REACTION OF DISINTEGRATION OF ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ ON THE BEAM OF COHERENT BREMSSTRAHLUNG RADIATION

I.V. Dogjust

National Science Centre "Kharkov Institute of Physics and Technology"

Academicheskaja str.1, Kharkov, Ukraine, 61108

e-mail: dogjust@kipt.kharkov.ua

Received July 7, 2014

In this work there are set experimental data of the reaction ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ at the energy of photonic beam of $E_\gamma \approx 30-100$ MeV, received by the streamer chamber method on the coherent beam of γ -rays. The beam of photons was received in the result of coherent bremsstrahlung radiation (CBR) of electrons from the accelerator LU-2000 on the diamond mono crystal. There are measured energetic and angular correlations of the reaction products. It is shown, that the behavior of angular and energetic distributions, received by the diffusion chamber method on the bremsstrahlung beam of γ -rays with the help of streamer chamber on the coherent beam are the same, that allows us make a conclusion about reliability of identification of events. The presence of the deuterons with high kinetic energy and big angle recession with the proton can be explained by absorption of the γ -rays by three or more correlated nucleons.

KEYWORDS: photons, nucleons, protons, correlations, helium nucleus, streamer chamber, coherent bremsstrahlung radiation

КОРЕЛЯЦІЇ ВТОРИННИХ ЧАСТИНОК В РЕАКЦІЇ РОЗЩЕПЛЮВАННЯ ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ НА ПУЧКУ КОГЕРЕНТНОГО ГАЛЬМІВНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ

I.V. Догюст

Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»

вул. Академічна, 1, м. Харків; 61108

У цій роботі приведені експериментальні дані реакції ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ при енергії фотонного пучка $E_\gamma \approx 30-100$ MeV, отримані методом стримерної камери на когерентному пучку γ -квантів. Пучок фотонів виходив в результаті когерентного гальмівного випромінювання (КГВ) електронів від прискорювача ЛП-2000 на монокристалі алмазу. Виміряні енергетичні і кутові кореляції продуктів реакції. Показано, що поведінка кутових і енергетичних розподілів, отриманих методом дифузійної камери на гальмівному пучку γ -квантів і за допомогою стримерної камери на когерентному пучку співпадають, що дозволяє зробити укладення про надійність ідентифікації подій. Наявність дейтронів з високою кінетичною енергією і великим кутом розльоту з протоном може бути пояснена поглинанням γ -квантів трьома і більше корельованими нуклонами.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: фотони, нуклони, протони, кореляції, ядро гелію, стримерна камера, когерентне гальмівне випромінювання

КОРЕЛЯЦИИ ВТОРИЧНЫХ ЧАСТИЦ В РЕАКЦИИ РАСЩЕПЛЕНИЯ ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ НА ПУЧКЕ КОГЕРЕНТНОГО ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

И.В. Догюст

Национальный Научный Центр "Харьковский Физико-технический Институт"

ул. Академическая 1, г. Харьков, Украина, 61108

В данной работе приведены экспериментальные данные реакции ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ при энергии фотонного пучка $E_\gamma \approx 30-100$ MeV, полученные методом стримерной камеры на когерентном пучке γ -квантов. Пучок фотонов получался в результате когерентного тормозного излучения (КТИ) электронов от ускорителя ЛУ-2000 на монокристалле алмаза. Измерены энергетические и угловые корреляции продуктов реакции. Показано, что поведение угловых и энергетических распределений, полученных методом диффузионной камеры на тормозном пучке γ -квантов и с помощью стримерной камеры на когерентном пучке совпадают, что позволяет сделать заключение о надежности идентификации событий. Наличие дейтронов с высокой кинетической энергией и большим углом разлета с протоном может быть объяснено поглощением γ -квантов тремя и более коррелированными нуклонами.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: фотоны, нуклоны, протоны, корреляции, ядро гелия, стримерная камера, когерентное тормозное излучение

There is a set experimental fact that on the small distances between nucleons in the nucleus there emerge correlations. The investigation of the nucleon – nucleonic correlations, two-nucleonic correlations in particular, is visual in the reactions of photodisintegration with the exit of the nucleon pairs. For investigation of the mechanism of the absorption of the photons by nuclei there is a reasonable investigation of the (γ, pn) – processes on the few nucleon nuclei, on the ${}^4\text{He}$ nucleus in particular.

Three-body photodisintegration reactions of the helium nucleus ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ studied at intermediate energies range from the reaction threshold up to 150 MeV by the diffusion chamber method on the γ -ray bremsstrahlung beam from an

electron accelerator with an energy of 300 MeV [1-3]. The study results were interpreted by the authors as an evidence of a significant contribution to this process of the mechanism of photo absorption by pn-pair ${}^4\text{He}$.

During the investigation of the mechanism of interaction of electromagnetic radiation with light nuclei, in particular, the correlations of the nucleons in the nucleus ${}^4\text{He}$ it is interesting to study this reaction by qualitatively different procedure, using the photon beam, which spectrum differs from the bremsstrahlung. This paper presents new data about the reaction ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$, obtained by processing the experimental results on coherent photon beam electron accelerator 2 GeV using the streamer chamber. These angular and energy correlations of secondary particles are compared with those obtained by the method of diffusion chamber on the beam bremsstrahlung γ -rays beam.

The aim of the present work is to conduct investigation by new method, i.e. method of streamer chamber on the coherent bremsstrahlung beam of γ -rays, received earlier with the help of diffusion chamber of products correlations of photodisintegration reaction ${}^4\text{He}(\gamma, pn)$, its comparison. The coincidence of the results justifies the reliability of identification of experimental data. Later, more accurate information about the reaction mechanism ${}^4\text{He}(\vec{\gamma}, pn)d$, about the relative contribution of one nucleon and mesonic exchange currents can be received from the asymmetry of the products reaction on the polarized beam of γ -rays, received by the same method. Nowadays there is no experimental data about the investigation of the reaction mechanism ${}^4\text{He}(\vec{\gamma}, pn)d$ on the polarized beam of γ -rays at E_γ up to 150 MeV.

METHODOLOGY OF THE EXPERIMENT

Photon beam was obtained as a result of coherent bremsstrahlung (CB) of electrons from electron accelerator LU-2000 with an energy of 600 MeV and 800 MeV on diamond mono crystal with thickness $t_a = 0.3$ mm and $t_b = 0.14$ mm [4]. The position of the first maximum in the CBR spectrum was set at an energy $E_\gamma^{\text{max}} = 60$ MeV and 80 MeV. In the coordinate system, in which the X-axis coincides with the direction of the photon impulse, and Z-axis – with the direction of the magnetic field and with the axis of photographing, the polarization vector γ -rays beam was placed at an angle of $\pm 45^\circ$ to Z. In Fig. 1, the solid line shows the spectra of the photon beam CBR, after passing through the streamer chamber.

The events of this reaction were selected and visually identified by the following criteria: two-pronounced stars events were considered throughout the whole chamber volume, the apex of which is within the γ -rays beam, the recession angle between the tracks that do not exceed 160° . The impulses of the particles, forming an angle with the direction of the magnetic field less than 45° , could not be measured with sufficient accuracy, so these events were not considered. Coordinate measuring tracks was performed with semiautomatic microscopes. Kinematic parameters of the particles were determined by program of geometrical reconstruction of events. Accuracy of determination of impulse of the reaction products ($\Delta P/P$) was 8%, the polar angle – 3° , azimuth angle – 8° .

By visual selection of events to identify the proton and deuteron were taken into account the following: the ionization track, its characteristic change along the track, the angle to the median plane and calculated after processing, the kinematic parameters of the particles. Track method did not allow to determine the amount of emitted neutral particles, and consequently, to reliably calculate the reaction ${}^4\text{He}(\gamma, 2p2n)$ [5]. Dubious events in which the proton and deuteron were difficult to distinguish, were -5% of the events.

Background reactions were excluded in the process of visual selection and analysis of kinematics of the events after the measurement. Two-pronounced stars events processes ${}^4\text{He}(\gamma, p)T$, ${}^4\text{He}(\gamma, 2d)$ were separated from the reaction of interest on the balance of the cross-impulse.

Energy of the incident γ -rays and neutron parameters were calculated by the measured kinematic data of charged particles - the proton and deuteron [6].

If P_x, P_y, P_z - total projections of the proton and deuteron impulses per axis X, Y, Z and E - their total energy, then the energy of the gamma- is determined by the formula:

$$E_\gamma = \frac{m_n^2 + P^2 - (M_a - E)^2}{2(M_a - E + P_x)}, \quad (1)$$

where $P = (P_x^2 + P_y^2 + P_z^2)^{1/2}$, M_a – mass of the target nucleus, m_n – mass of the neutron. Impulse P_n and energy E_n of the neutron were determined by correlations: $P_{nx} = E_\gamma - P_x$, $P_{ny} = -P_y$, $P_{nz} = -P_z$. Hence:

$$P_n = (P_{nx}^2 + P_{ny}^2 + P_{nz}^2)^{1/2} \\ E_n = (P_n^2 + m_n^2)^{1/2} \quad (2)$$

Thus, in the process of treatment the kinematics of the process was completely restored. In Fig.1 points represent the experimental data of spectrum, obtained using the streamer chamber for the reaction of photodisintegration

${}^4\text{He}(\gamma, \text{pn})\text{d}$ at the photon energies, in mark $E_\gamma^{\text{max}} = 60$ MeV (a) and 80 MeV (b) with $\Delta E_\gamma = 5$ MeV. The errors are statistical. Solid curve – is a calculated spectrum CBR, dashed - calculated bremsstrahlung spectrum [4].

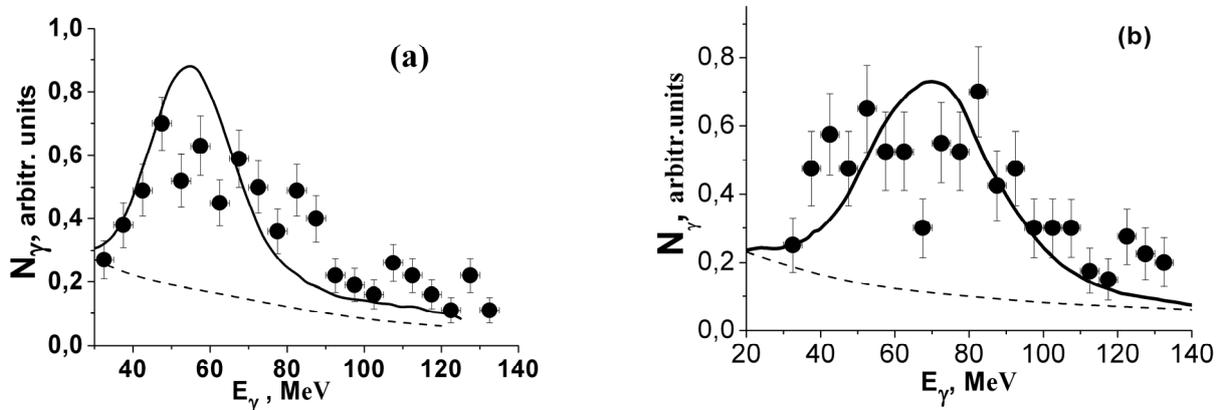


Fig.1 The CBR spectrum of photons

(a) – $E_\gamma^{\text{max}} = 60$ MeV, (b) – 80 MeV. Experimental points obtained using the streamer chamber for the reaction of photodisintegration ${}^4\text{He}(\gamma, \text{pn})\text{d}$. Solid curve – is a calculated spectrum CBR, dashed - calculated bremsstrahlung spectrum [4].

ANGULAR AND ENERGETIC CORRELATIONS

One of the most "sensitive" distributions, allowing to evaluate the role of nucleon correlations in the nucleus, is the distribution of the relative energy of pairs of the reaction products, defined by expression [7]:

$$t_{ik} = \left[T_i + T_k - \frac{(\vec{P}_i + \vec{P}_k)^2}{2(m_i + m_k)} \right] \cdot E_0^{-1}, \quad (3)$$

where $T_i, T_k, P_i, P_k, m_i, m_k$ – kinetic energies, impulses and mass of the secondary particles, E_0 – the sum of kinetic energies of all reaction products.

Fig. 2 shows the distribution of relative energy pairs of products ${}^4\text{He}(\gamma, \text{pn})\text{d}$ reaction. Statistical distributions are plotted by the curve, in the calculation of which it was assumed that the correlations are determined by the phase space, the matrix elements of transition from the initial to the final state are constants and interaction in the final state does not affect on the result [7]. Upon receiving of distributions in the energy range (30-60) MeV were used events obtained for the photon beam $E_\gamma^{\text{max}} = 60$ MeV, and for distributions in the energy range (60-100) MeV events received for $E_\gamma^{\text{max}} = 80$ MeV.

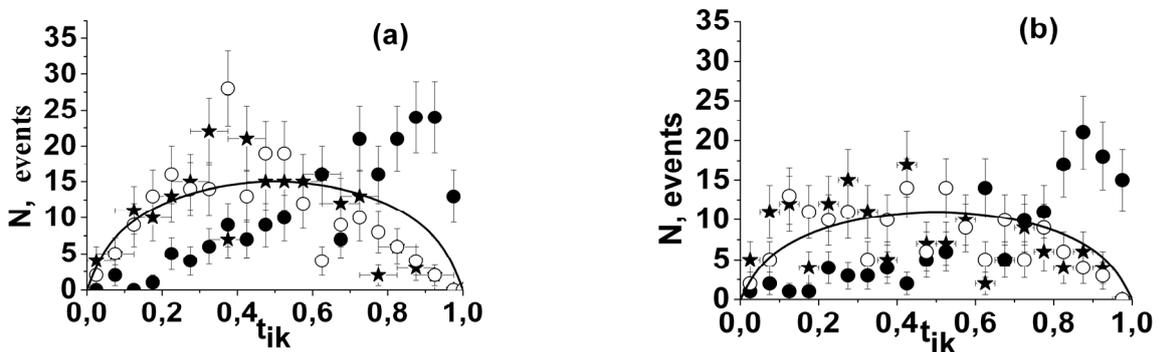


Fig. 2 Distributions on the relative energy of pairs of the reaction products of ${}^4\text{He}(\gamma, \text{pn})\text{d}$

(a) – $E_\gamma^{\text{max}} = 60$ MeV, (b) – 80 MeV, resulting in a beam of coherent bremsstrahlung of photons. Dark circles - pn pairs, sprockets - pd pairs, light circles - nd pairs, curve - statistical distributions [7].

Since experimental data were obtained by summation of events throughout the chamber volume, i.e. summed over all angles, they do not depend on the polarization of the photon beam.

These distributions indicate that the proton-neutron pair takes a significant part of energy, i.e. in the reaction ${}^4\text{He}(\gamma, \text{pn})\text{d}$ absorption of γ -rays, that mainly occurs in the correlated proton-neutron pair. Distribution obtained by the diffusion chamber method on a beam of bremsstrahlung photons also indicate a strong correlation of pn-pairs having the maximum possible relative energy, and with increasing E_γ this correlation becomes more clear [3].

When interacting γ -rays with a correlated proton-neutron pair can be expected that the proton and neutron will fly in opposite directions.

The following figures show the experimental data obtained on the coherent bremsstrahlung photon beam by the method of streamer chamber by the number of events depending on the angle recession with a proton and neutron (Fig. 3a,b) and proton and deuteron (Fig. 3c,d) and applied to the data obtained on the bremsstrahlung beam of γ -rays with the help of diffusion chamber. Results are normalized to the same area. Within experimental error data from diffusion and streamer chambers coincide. The curve shows normalized onto the experimental data, theoretical calculations from the streamer chamber [1] in quasideuteron approximation.

For proton - neutron pair there is a noticeable deviation of the experimental data from the theoretical curve, and for proton - deuteron pair the consent of experimental data with the theoretical curve is satisfactory. Such disagreement does not allow to draw conclusions about justice of quasideuteron mechanism for description of the experimentally obtained angular correlations.

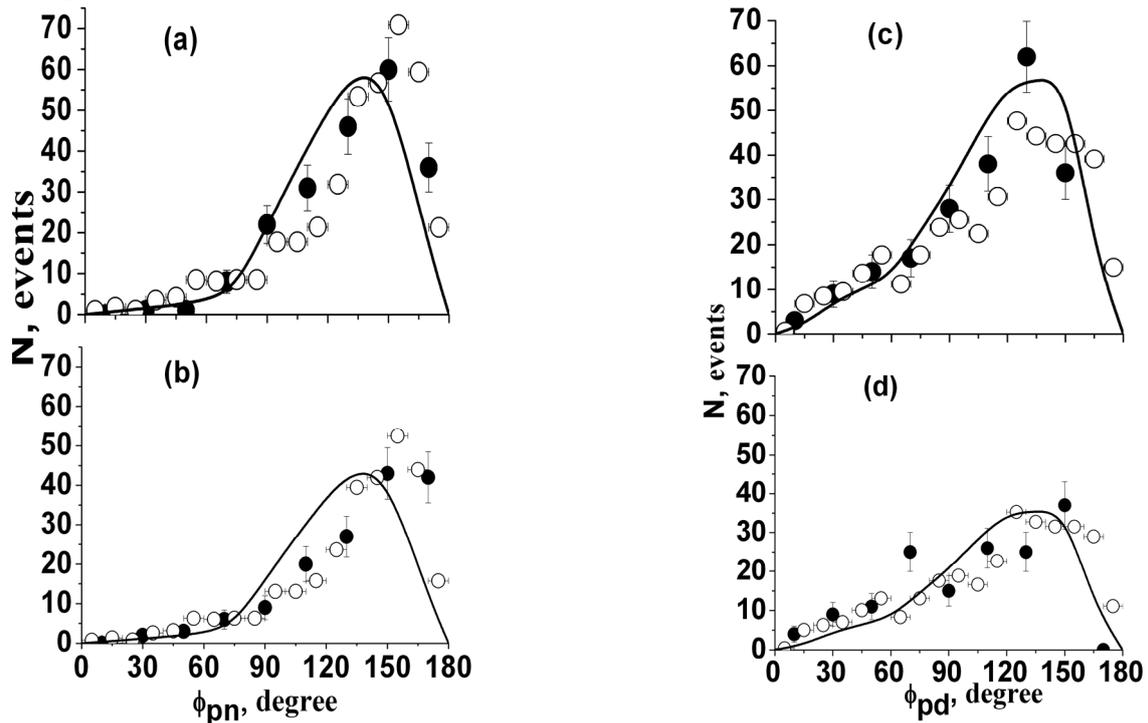


Fig.3 Dependence of the number of events from the angle recession ϕ_{pn} of proton and neutron and ϕ_{pd} for proton and deuteron (a,c) – energy γ -rays (30-60) MeV, (b,d) – (60-100) MeV. Dark circles - data from the streamer chamber, light circles – data from the diffusion chamber [3], curve - theoretical calculations in the pole approximation of the quasideuteron type [1].

Fig.4 shows the dependence of number of events on the kinetic energy of the deuteron for two intervals of energy photon beam (30-60) MeV and (60-100) MeV obtained by coherent bremsstrahlung and bremsstrahlung beams γ -rays. There is providing a comparison with theoretical calculations. Results are normalized to the same area. Within experimental error data from diffusion and streamer chambers agree qualitatively. Theoretical calculations carried out under the assumption that the polar diagrams [1] are most similar to the description of experimental data for the two energy intervals.

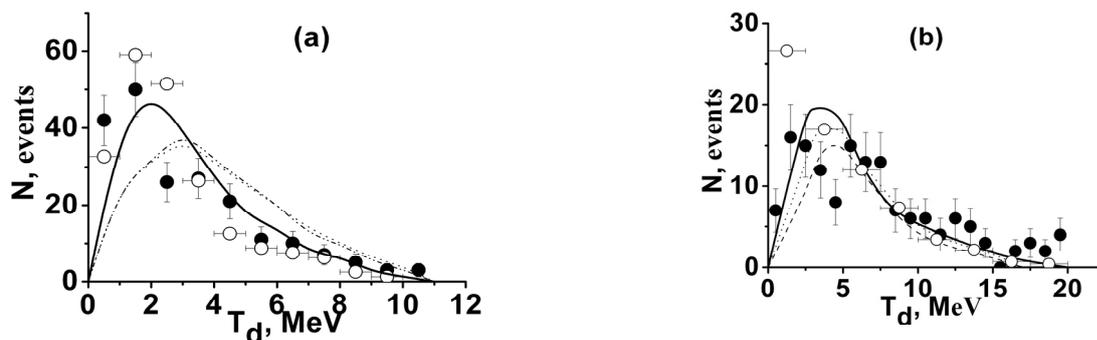


Fig. 4. Dependence of number of events from kinetic energy of the deuteron at the energy of γ -rays (a) - in the range (30-60) MeV, (b) – (60-100) MeV. Dark circles - streamer chamber, light circles - diffusion. Curves - theoretical calculations: solid curve - theoretical calculations for the pole diagram [1]. Dotted and dash-dotted curves – triangle diagrams [2].

It should be expected that during the absorption of γ -rays by the nucleon pair, deuteron is a spectator and should have a much lower kinetic energies than the proton.

In the analysis of experimental data of three-particle photodisintegration of ${}^4\text{He}$ nucleus at energies γ -rays up to 100 MeV [8], obtained on the basis of the diffusion chamber located on the bremsstrahlung beam of γ -rays, there was observed yield of deuterons with high kinetic energies.

Fig. 5 shows the number of events from the kinetic energy of protons and deuterons. The errors are statistical.

As shown in Fig.5 the significant part of the deuterons has a much lower energy than protons. With increasing energy, at the kinetic energies of 7 MeV the number of protons and deuterons coincides. This also coincides with the results obtained in the [8].

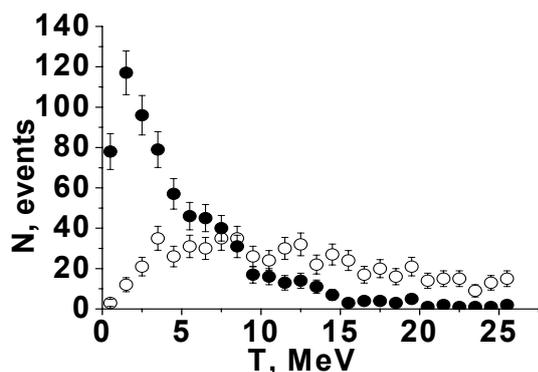


Fig. 5. Dependence of the number of events from the kinetic energy: light circles - protons, dark circles – deuterons

100 MeV. Identified as the reaction ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d \approx 1000$ two-pronounced stars events at energy γ -rays at peak $E_{\gamma}^{\max} = 60$ MeV and $E_{\gamma}^{\max} = 80$ MeV. Energy and angular correlations of reaction products are measured. It is shown that the behavior of the angular and energetic distributions of the experimental data on the bremsstrahlung and coherent beams coincide, that allows us to do a conclusion about reliability of identification of events. Comparison with theoretical predictions does not allow to make a definite conclusion about the reaction mechanism. Availability of deuterons with high kinetic energy and large angle recession with a proton can be explained by the absorption of γ -rays by three or more correlated nucleons.

Currently there is no experimental data on the investigation of the reaction ${}^4\text{He}(\vec{\gamma}, pn)d$ polarized beam of γ -rays at energies up to 150 MeV. For more information about the mechanism of the reaction type $(\vec{\gamma}, pn)$, the relative contribution of one-nucleon and meson exchange currents, one can hope to get during the investigation of asymmetry of the reaction products.

In the conclusion author expresses her gratitude to prof. Sorokin P.V. for constant attention to this work and for discussion of the received results.

REFERENCES

1. Arkatov Yu. M., Vatsset P.I., Voloshchuk V.I. et al. On the mechanism of three-particle photodisintegration of ${}^4\text{He}$ // *Yad. Fis.* - 1980. - T. 32, No.1 (7). - S. 5 -10.
2. Arkatov Yu.M., Vatsset P.I., Voloshchuk V.I. et al. The role of the mechanism of triangular diagrams in reaction ${}^4\text{He}(\gamma, pn){}^2\text{H}$ // *Ukr. Fis. Journal.* - 1982. - T. 27, No.6.- S. 826-829.
3. Arkatov Yu.M., Vatsset P.I., Voloshchuk V.I. et al. Studies of pair correlations in few-nucleon systems by ${}^4\text{He}$ photodisintegration // *Ukr. Fis. Journal.* - 1980. -T.25, No.6. - S. 933-936.
4. Lyakhno Yu.P., Voloshchuk V.I., Ganenko V.B. et al. Measurement of angular dependence of the asymmetry of the cross section for ${}^4\text{He}(\gamma, p)\text{T}$ and ${}^4\text{He}(\gamma, n){}^3\text{H}$ reaction induced by 40, 60 and 80 MeV linearly polarized photons // *Yad. Fis.* - 1996. - T.59, No.1. - S.18-22.
5. Arkatov Yu.M., Vatsset P.I., Voloshchuk V.I. et al. Analysis of the reaction mechanism for ${}^4\text{He}(\gamma, 2p2n)$ // *Yad.Fis.* - 1985. - T.41, No.5. - S. 1105-1108.
6. Baldin A.M., Gol'danskiy V.M., Maksimenko V.M., Rosental I.L. Kinematics of nuclear reactions. - Atomizdat, 1968. - 455s.
7. Kolybasov V.M. Correlations at π^- - mesons capture by nuclei // *Yad. Fis.* - 1966. - T.3, No.5. - S.965-972.
8. Glaznev M.S., Gorbenko E.S., Bepalov A.L., Murtazin R.T., Khodyachikh A.F. Study of ${}^4\text{He}(\gamma, pn)d$ reaction for E_{γ} up to 100 MeV // *Problems of Atomic Science and Technology.* - 2013. - No.3(85). - P. 187-191.

PACS: 28.41.Qb, 96.50.Vg, 78.70.-g, 32.80.Cy, 78.70.En, 81.05.-t, 81.05.Ni, 81.20.Vj, 02.70.-c, 02.70.Uu

MONTE CARLO EVALUATION OF THE RADIATION SHIELDING EFFICIENCY OF LAMINATED COMPOSITES UNDER ELECTRON AND PHOTON IRRADIATION

**B.V. Borts¹, M.I. Bratchenko¹, S.V. Dyuldy¹,
I.G. Marchenko^{1,2}, D.A. Sanzharevsky¹, V.I. Tkachenko^{1,2}**

¹ National Science Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology"

Akademichna Str. 1, 61108, Kharkiv, Ukraine

² V.N. Karazin Kharkiv National University

Svobody Sq. 4, 61022, Kharkiv, Ukraine

E-mail: tkachenko@kipt.kharkov.ua

Received June 26, 2014

The heterogeneity effect on the shielding efficiency of laminated composites under electron and gamma irradiation of moderate (~MeV) energies was studied. The effect was quantified, by means of Monte Carlo method, in terms of the asymmetry of the bimetallic dual layer system's AlW shielding efficiency depending on the direction (Al-W vs. W-Al) of both electron and photon irradiation. The charged particles and bremsstrahlung radiation transport was simulated for electron irradiation of the 9-layer composite test sample fabricated by the vacuum hot rolling solid phase welding of Ti-Ni-Cu-Nb-Cu-(W-Cu)₂ layers. Dose and photon kerma rates behind the laminated shielding were calculated and the prospects of its application under severe constraints both on shielding weight and dimensions were substantiated.

KEYWORDS: electrons, photons, radiation shielding, laminated composite materials, Monte Carlo method.

ОЦІНЮВАННЯ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО РАДІАЦІЙНО-ЗАХИСНОЇ ЕФЕКТИВНОСТІ ШАРУВАТИХ КОМПОЗИТІВ ПІД ОПРОМІНЕННЯМ ЕЛЕКТРОНАМИ І ФОТОНАМИ

Б.В. Борц¹, М.І. Братченко¹, С.В. Дюльдя¹, І.Г. Марченко^{1,2}, Д.А. Санжаревський¹, В.І. Ткаченко^{1,2}

¹ Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»

61108 Україна, м. Харків, вул. Академічна, 1

² Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна

61022, Україна, м. Харків, пл. Свободи 4

Досліджений вплив гетерогенності шаруватих композитів на ефективність захисту ними від електронного та γ -опромінення помірних (~MeV) енергій. Методом Монте-Карло він охарактеризований кількісно в термінах асиметрії захисних показників біметалічної двошарової системи AlW в залежності від напрямку (Al-W чи W-Al) опромінення обох видів. Для електронного опромінення експериментального зразка 9-шарового композита Ti-Ni-Cu-Nb-Cu-(W-Cu)₂, виготовленого з'єднанням шарів у твердій фазі шляхом гарячої прокатки в вакуумі, промодельований перенос у зразку зарядженої й гальмівної компонент випромінювання, розраховані потужності дози й фотонної керми за захисною структурою та обґрунтована перспективність її застосувань за жорстких обмежень одночасно за вагою та габаритами захисту.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: електрони, фотони, радіаційний захист, шаруваті композитні матеріали, метод Монте-Карло.

ОЦЕНКА МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНОЙ ЭФФЕКТИВНОСТИ СЛОИСТЫХ КОМПОЗИТОВ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ ЭЛЕКТРОНАМИ И ФОТОНАМИ

Б.В. Борц¹, М.И. Братченко¹, С.В. Дюльдя¹, И.Г. Марченко^{1,2}, Д.А. Санжаревский¹, В.И. Ткаченко^{1,2}

¹ Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»

61108, Украина, г. Харьков, ул. Академическая, 1

² Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина

61022, Украина, г. Харьков, пл. Свободы 4

Исследовано влияние гетерогенности слоистых композитов на эффективность защиты ими от электронного и γ -облучения умеренных (~MeV) энергий. Методом Монте-Карло оно охарактеризовано количественно в терминах асимметрии защитных показателей биметаллической двухслойной системы AlW в зависимости от направления (Al-W или W-Al) облучения обоих видов. Для электронного облучения экспериментального образца 9-слойного композита Ti-Ni-Cu-Nb-Cu-(W-Cu)₂, изготовленного соединением слоёв в твёрдой фазе путём горячей прокатки в вакууме, промоделирован перенос в образце заряженной и тормозной компонент излучения, рассчитаны мощности дозы и фотонной кермы за защитной структурой и обоснована перспективность её применений при жестких ограничениях одновременно по весу и габаритам защиты.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: электроны, фотоны, радиационная защита, слоистые композитные материалы, метод Монте-Карло.

R&D of materials for efficient protection against ionizing radiation [1,2] still remains an actual direction of radiation physics and engineering. Biological shielding of nuclear reactors, neutron sources and charged particles accelerators, tanks for spent nuclear fuel and radioactive waste, protective components of medical equipment and clothing [3] are common applications of shielding materials. Other applications of great fundamental value are the background minimization in low-background experiments on Dark Matter [4] and double β -decay searches, protection of radiation detectors [5] and electronics in nuclear medicine as well as on interplanetary spacecrafts and satellites of the Earth [6,7].

The general function of shielding materials is to reduce the rate of absorbed dose D [1,2,8] of radiation in the vital

parts of a system to an acceptable level compliant to working standards, or objectives and conditions of experiments. The shielding material optimum selection is then determined by the kind and energy spectrum of radiation. The optimization issues are often occasioned by an urgent need of simultaneous efficient protection against various kinds of radiation, e.g., neutrons and γ -rays in nuclear reactors, electrons, protons, X- and γ -rays in space applications, and so on.

It is worth noting that such a diversity is not only due to multi-component nature of primary radiation sources but also emerges, in matter, from secondary processes at cascade development of electromagnetic (e.-m.) and nuclear interactions. Typical examples are γ -rays produced at inelastic interactions of neutrons with nuclei of reactor fuel, structural and shielding materials, bremsstrahlung of accelerated relativistic electrons as well as the electron-photon, muon and hadron showers at passage of high-energy cosmic rays through matter [4].

From the standpoint of end-user industrial applications, special attention, in the design of radiation shielding and the selection of appropriate materials, has to be paid to the minimization of weight and/or geometrical dimensions of shielding relevant component parts of different equipment and devices, as well as to the durability of their operation under extreme conditions of high temperature and mechanical stress. These requirements are usually considered as optimization criteria which are specific to each application.

A promising way of the complex radiation environments operating shielding optimization is the application of composite materials and, in particular, of laminated multi-layer structures and coatings. Just the heterogeneity of these structures improves their protective efficiency taking into account all the above-mentioned constraints peculiar to specific applications. For example, to protect against γ -rays used are the so called "graded-Z" laminated structures [3] having atomic numbers Z of layer materials successively decreasing from high- Z (Pb, W, Ta) to low- Z (Sn, Cu, Fe, Al) ones in the direction of radiation propagation. The main function of the sequence of low- Z layers is to absorb the secondary Auger electrons and fluorescent X-ray photons emitted at scattering and absorption of γ -rays in the preceding Z -ordered layers of higher- Z materials. Such a protective structure is frequently more lightweight than the single-layer heavy metal shielding. Laminated composites of materials of different Z were also proposed [6,7,9,10] for protection against protons and β -radiations (moderately relativistic electrons) especially relevant to a shielding of spacecrafts in Earth orbits [9,11]. In this case of charged particles irradiation, the due selection of the layers alternation promotes the suppression of the yield of secondary bremsstrahlung γ -quanta extremely undesirable in view of their high penetrability.

From the point of view of the materials science and technology, of great practical value is the perfecting of the laminated shielding composites fabrication methods. This is especially true in poor compatibility of the materials they should be composed of. One of these methods, the joint of layers of dissimilar materials in the solid phase by their vacuum hot rolling [12], is developed and practicing in NSC KIPT. It allows to obtain multilayer composite materials having high physical and mechanical properties. This makes the laminated composites thermal stress resistant and well-deformable to impart the specific applications' required shapes without the loss of layers integrity. The method is applicable to virtually arbitrary combinations of metals in the multilayer composite. However, the structural complexity of such laminates confronts the shielding design engineers with the task of reliable prediction of their radiation protection parameters which do not reduce to the well-known tabular data [1,2] for standard shielding materials.

The design and optimization of compositionally and structurally complex radiation shielding requires both the large amount of experimental tests carried out in conditions close to the expected radiation environments and the fine preliminary calculations of the efficiency of the developing material and/or structure with an accuracy comparable with that of experimental measurements. The application of computational technique to the design of heterogeneous shielding has a long history [1,9,13,14] and can significantly reduce the costs of finding of the most appropriate option and the amount of ionizing radiation sources involvement in the R&D procedures. Currently, the precise methods of computer modeling of radiation propagation through heterogeneous media are widely used for these purposes. Particularly, this is the Monte Carlo (MC) method [15]. It is implemented in numerous computer codes which offer the most adequate and comprehensive simulation of all elementary physical processes of interaction of ionizing radiations with materials and structures complex by their geometry as well as by their elemental and isotopic composition.

The present paper deals with the application of Monte Carlo simulation to the study of peculiarities of the passage of MeV-energy electrons, the accompanied bremsstrahlung, X-ray and γ -beams through dual and multilayer shielding structures. This advances the previous studies of the authors [16–18], and extends the use of simulation to the assessment of shielding efficiency of the sample of multilayer structure obtained by the solid phase welding of metals.

PROBLEM SETUP

The objective of this work is the detailed computational description of the spectral and dosimetric characteristics of radiation passed through certain typical examples of laminated shielding structures.

We restrict ourselves to the protection against electrons of moderately relativistic energies $E_e = 0.5 \div 3$ MeV as well as against photons of energies $E_\gamma = 10^1 \div 10^3$ keV in the X-ray and γ -range, the topical cases for many electro-physical irradiation processes, medical, and space applications. We shall consider different, by the layers' composition and alternation order, laminated shields under irradiation by broad parallel beams of electrons and photons.

Our task is to calculate the energy spectra of various kinds of the shielding emerged radiation along with the efficiency relevant and the dosimetry standards compliant physical quantities [1,2,8] such as the attenuation factor k , the photon air-kerma K and the dose D absorbed in a solid-state detector located immediately behind the shielding.

Two interrelated goals are pursued in this paper at the subsequent analysis of the results of calculations.

First, we investigate quantitatively the laminated shields' heterogeneity impact on their radiation-protective efficiency ratings. For model bimetallic dual layer system of tungsten and aluminum, this is done in terms of the asymmetry of these ratings depending on the order (Al–W vs. W–Al) of layers the relativistic electron or photon beams pass through the shield. We identify and discuss the essentially different nature of the asymmetry effect in these two cases.

Next, we proceed to the example of a real multilayer shielding composite TiNiNbWCu fabricated by the solid phase welding of different metals and designed for optimized protection against electrons with energies up to 3 MeV. The goal is to rate this laminated composite quantitatively for this specific use-case. The results of calculations of various dosimetric quantities are compared, as functions of electron energy, with the corresponding results for typical single-element materials widely used for protection against β - and γ -radiation. Basing on such a comparative analysis, we discuss possible applications of this novel composite material and the prospects of application of our computational technique to further R&D of composite shielding.

SIMULATON METHOD AND COMPUTER CODES

To simulate the (e^-,γ) transport in laminated shields, we use two completely independent general-purpose MC codes, the extensively validated commercial code PENELOPE [19,20] (we already used it earlier in refs. [17,18]) and the multi-purpose code RaT 3 [21] developed in-house in NSC KIPT on the basis of the open-source libraries GEANT4 OO Toolkit [22]. Both of these codes make use of the Monte Carlo method of the numerical modeling of the radiation interaction with matter. The method consists in the successive sampling of random events of the elementary processes of radiations interaction with atomic nuclei and electrons of the medium and the statistical estimation (“tallying”) of the expected mean values of various physical quantities, including the dosimetric ones, to be measured in real experiments. Thus, these codes implement the computer experiment methodology [21] to simulate a natural one at a very limited use of model assumptions. This allows to predict and, in prospect, to optimize the parameters of the systems under design.

In our calculations, both of the applied codes took into account the complete systematics of the e.-m. processes of radiation particles interaction with media. These are: the electrons and positrons ionization and radiation stopping resulted in their slowing-down and emission of bremsstrahlung photons; the multiple nuclear scattering of charged particles and the production of high-energy δ -electrons; the photoabsorption which produces secondary electrons and fluorescent photons; the photons incoherent (Compton) and coherent (Rayleigh) scattering and their γ -conversion to e^\pm -pairs followed by emission of annihilation γ -quanta. Hadronic processes (such as photonuclear reactions) were omitted from calculations as irrelevant to the considered energy range of radiations.

The PENELOPE code is focused exclusively on the simulation of e.-m. processes of leptons and photons interaction with matter in a wide ($\sim 10^1 \div 10^9$ eV) range of energies. In this area, the code manifests an outstanding accuracy of physical models, data and algorithms [20]. This allows to rate it as a reference code. On the other hand, the research code RaT 3 inherits all the variety of physical models and data banks of GEANT4 package [22] which cover the physics of elementary particles as well as the high-energy hadron, and neutron physics. Therefore, it has a much wider range of applications [21]. RaT 3 fully incorporates various options of physical models of the above-listed e.-m. interaction processes. Moreover, modern versions of GEANT4 contain a set of e.-m. models which is specifically focused on the reproduction (‘emulation’) of the physics of the standard code PENELOPE. We mainly used this subset of GEANT4 models for the RaT code based simulations. It is worth noting here that the extra task of this paper, the methodical one, was the comparison of the modeling results obtained using both options of the applied software, PENELOPE and RaT.

ASYMMETRY OF THE PROTECTIVE EFFICIENCY OF BIMETALLIC COMPOSITES

Aluminum with density $\rho_{Al} = 2.7$ g/cm³, and the $\rho_W = 19.3$ g/cm³ dense tungsten were chosen as the conventional shielding materials for protection against different kinds of radiation which we consider in this paper. Aluminum is widely used for protection against electron flows of moderate energies (particularly, in aerospace engineering having in mind its low specific gravity). However, it is a lightweight material which is ineffective for protection against γ -radiation due to its small $Z = 13$ (and, hence, a low concentration of electrons), and low density. The heavy tungsten ($Z = 74$) is preferable with respect to both of these parameters, and is widely used in X-ray and γ -radiation shielding. However, under irradiation by relativistic electrons of energies we consider here, the use of tungsten as a shielding material is impractical since, despite of the relatively small ranges $R_W \sim 1$ cm of such electrons in W, tungsten is one of the most efficient converters of their energy into bremsstrahlung. This virtually annuls all the protective effect.

We will study the protective properties of a laminate of these materials depending on which side it is irradiated by electrons or photons. So, we consider two systems having the low- Z (Al–W) or the high- Z (W–Al) metal at front.

Electron irradiation

Let's first compare the spectral properties of radiations observed behind the equally thick plates of each of the considered materials the bimetallic composite is made of.

The PENELOPE code calculated energy spectra $f(E)$ of electrons of initial energy $E_e = 2$ MeV after the passage

through $t_{Al} = t_W = 1$ mm thick slabs of aluminum and tungsten are shown in Fig. 1(a). Obviously, they are different qualitatively, as well as differ quantitatively by several orders of magnitude.

Such a behavior of MC simulated spectra of Fig. 1(a) is quite explainable and agrees well with simple estimations.

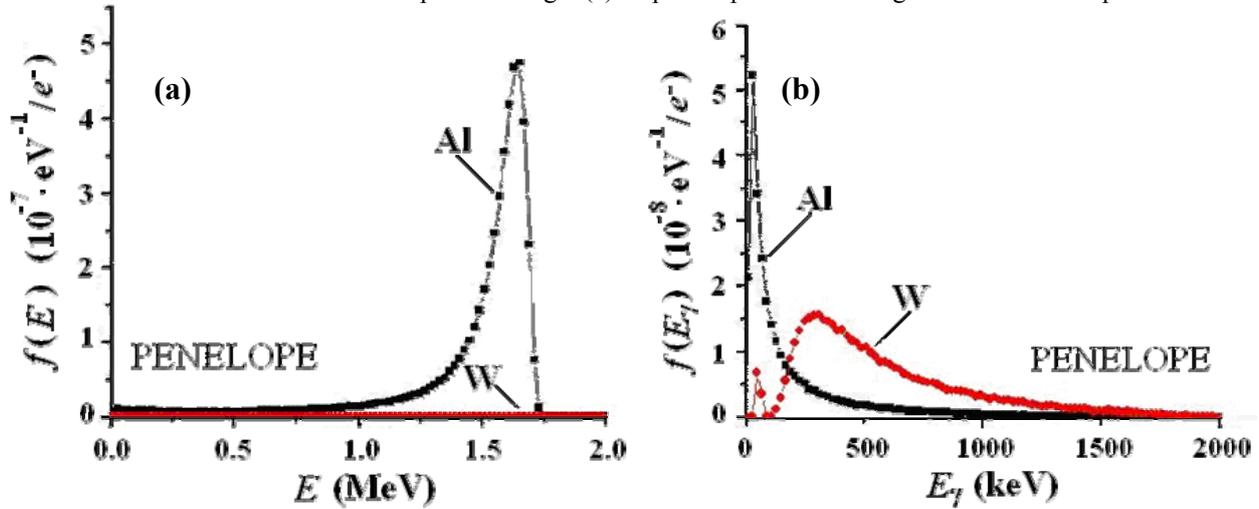


Fig. 1. Energy spectra of electrons (a) and photons (b) behind the 1 mm thick slabs of aluminum (Al) and tungsten (W) calculated for electron beam initial energy $E_e = 2$ MeV. Monte Carlo simulation by means of the PENELOPE code.

According to the U.S. NIST standard calculator ESTAR [23], the CSDA range R_{Al} of 2 MeV electrons in aluminum equals to $1.224 \text{ g/cm}^2 = 4.53 \text{ mm} > t_{Al} = 1 \text{ mm}$. Therefore, the 1 mm thick aluminum plate lets through a significant ($\sim 70\%$) fraction of primary electrons having the well shaped energy spectrum. At the same incident beam energy, the same ESTAR code reports the total specific stopping power $S = \rho^{-1} \cdot |dE/dz|$ of Aluminum $S_{Al} = 1.518 \text{ MeV}\cdot\text{cm}^2/\text{g}$ which results in the mean energy loss rate $|dE/dz| = \rho_{Al} \cdot S_{Al} = 410 \text{ keV/mm}$. This explains the pronounced spectral peak of Fig. 1(a) at $E \approx 1.6 \text{ MeV} \approx 2 \text{ MeV} - 410 \text{ keV/mm} \times 1 \text{ mm}$. The finite peak width is mainly due to the energy loss fluctuations taken into account by the simulation code. The low-energy spectral tail is the result of the electrons path length fluctuations due to multiple scattering by target atoms.

In tungsten, the range $R_W(2 \text{ MeV}) = 1.613 \text{ g/cm}^2 = 0.8 \text{ mm} < t_W = 1 \text{ mm}$. Therefore, the primary beam electrons are almost completely absorbed in the tungsten slab of chosen thickness. At first glance, this manifests its good protective ability. However, this conclusion is wrong if we recall the secondary bremsstrahlung produced by electrons. In Fig. 1(b), shown are the PENELOPE code calculated energy spectra $f(E_\gamma)$ of photons behind the same slabs of Al and W. By photon energy E_γ , they spread from X-ray energy range ($< 100 \text{ keV}$) up to the initial energy of electrons.

In a low- Z Aluminum, photoabsorption is unsubstantial down to very low photon energies $E_\gamma < 30 \text{ keV}$ [24]. Thus, the $f(E_\gamma)$ shape agrees well with the known shape ($\propto 1/E_\gamma$) of the Shiff bremsstrahlung spectrum. For high- Z and dense tungsten, the strong self-absorption of bremsstrahlung photons occurs in a target. This violates the Shiff spectral dependency below $E_\gamma < 0.5 \text{ MeV}$, and results in a relatively broad spectral maximum near $E_\gamma \approx 300 \text{ keV}$. Besides, the sharp low-energy peak of fluorescent X-ray photons is observed at energies in the vicinity of the Tungsten K_α и K_β series ($\approx 60 \div 70 \text{ keV}$). These secondary X-rays emerge from the thin surface layer at the rear edge of the tungsten slab.

As concerns the radiation-shielding properties of materials, Fig. 1(b) clearly shows that the spectral density of high-energy ($E_\gamma > 0.2 \text{ MeV}$) highly penetrable bremsstrahlung γ -quanta is significantly higher for the tungsten shield as against that of the shield of lightweight aluminum. With respect to this parameter, tungsten acts as a converter rather than the shielding material.

Now let's proceed to the sandwich structures Al-W and W-Al which correspond to the heterogeneous bimetallic composite of the same slabs having total thickness $t = t_{Al} + t_W = 2 \text{ mm}$ and irradiated, from different sides, by 2 MeV electrons. The data of Fig. 1(a) clearly show that both sandwiches guarantee an excellent protection against the primary beam electrons since 1 mm thick layer of tungsten is common to both of the structures. Therefore, it is sufficient to compare them with respect to the intensity parameters of the produced secondary bremsstrahlung.

Energy spectra of photons emerged from Al-W and W-Al targets are shown in Fig. 2. In this figure, the simulation data of the PENELOPE code (markers, we obtained these data earlier in ref. [18]) are supplemented with the results of the RaT code simulation (histograms). We note the good quantitative agreement of the simulation results of both codes throughout the whole range of photon energies. This also confirms the possibility to focus hereinafter on the outputs of the RaT code which is more flexible in respect of the problem setups and deep analysis of the modeling results.

By shape, the Fig. 2 spectra are similar to each other as well as to the Fig. 1(b) spectrum of photon emission from the tungsten plate. However, about 1.5-2 times high asymmetry of Al-W and W-Al systems is found with respect to the spectral density values in the whole range of the bremsstrahlung energies. The same order of magnitude quantifies

the asymmetry of the spectral energy distributions $F(E_\gamma) = E_\gamma f(E_\gamma)$ of emitted photons as well as that of the integral dosimetric functionals like $\propto \int \mu_{en}(E_\gamma) \cdot F(E_\gamma) dE_\gamma$ with photon-to-medium energy transfer coefficient $\mu_{en}(E_\gamma)$. With respect to all these parameters, the system Al-W looks more preferable, as a shielding structure, than the W-Al system.

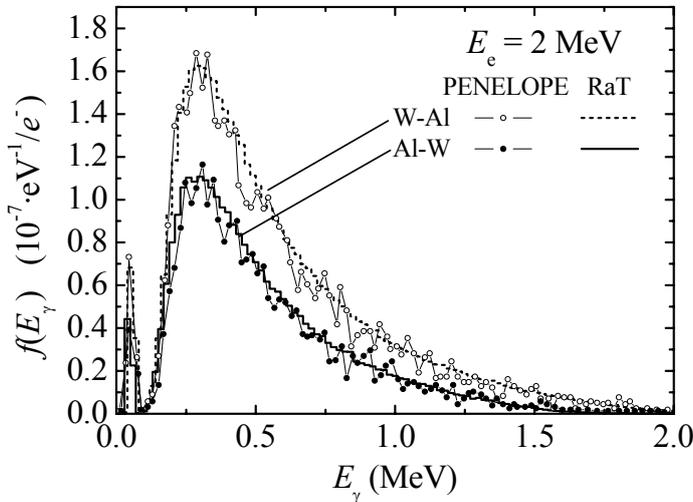


Fig. 2. Energy spectra of photons behind the 2 mm thick dual layer laminated composite of 1 mm thick plates of tungsten and aluminum depending on the order of W and Al layers the 2 MeV electrons pass through. Simulation by means of the PENELOPE (markers) and RaT 3 (histograms) Monte Carlo codes.

system, bremsstrahlung is only slightly attenuated in the successive aluminum layer where its local production rate is significantly weaker (see Fig. 1(b)). In the Al-W structure, the tungsten layer is effectively irradiated by electrons having the noticeably smaller energies (~ 1.6 MeV and less, see Fig. 1(a)) than the incident beam energy, 2 MeV. Radiative energy loss rate of electrons decreases approximately linearly with the decrease of their energy. Therefore, the production rate of γ -quanta in a tungsten layer decreases, as it is clearly evidenced by the data of Fig. 2.

Photon irradiation

Let's proceed to the case of Al-W and W-Al systems irradiation by photons of different energies E_γ .

For this case, we adopted the layers thicknesses $t_{Al} = 0.25$ cm and $t_W = 0.25$ mm since the shielding properties of such a sandwich were experimentally studied in NSC KIPT [16]. We shall also compare certain results of simulation of such a "thin" laminate with those we obtain for its tenfold scaled version, the "thick" system having $t_{Al} = 2.5$ cm and $t_W = 0.25$ cm. As of their mass per unit front surface area, these laminated composites are equivalent to the slabs of an effectively homogenized alloy $Al_{58.3}W_{41.7}$ (%wt) having a density $\rho_{eff} = 4.21$ g/cm³ and the thicknesses $t_{eff} = 2.75$ mm and 2.75 cm, respectively for "thin" and "thick" options.

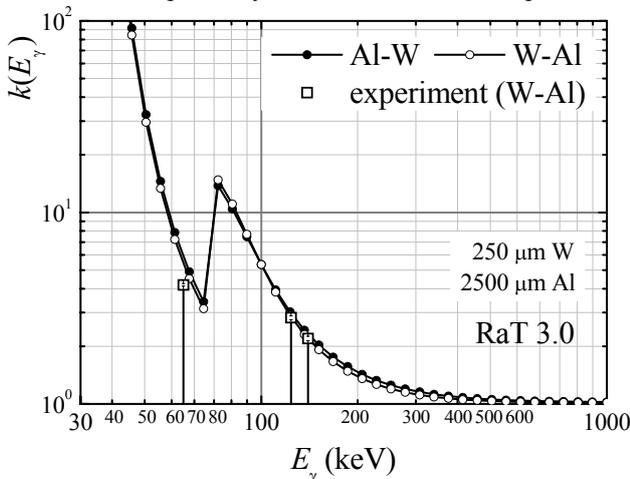


Fig. 3. Energy dependencies of attenuation factors $k(E_\gamma)$ at passage of photons with different energies E_γ through dual layer bimetallic laminated composites Al-W (●) and W-Al (○) in comparison with experimental data [16] for the system W-Al (□).

The main physical reason of the effect consists in the well-known correlation of ionization ($|dE/dz|_{ion} \propto Z/A$) and radiative ($|dE/dz|_{rad} \propto Z^2/A$) energy loss rates of relativistic electrons in a material having an atomic number Z and atomic mass A . The ratio $r = |dE/dz|_{rad} / |dE/dz|_{ion} \propto Z$ grows approximately linearly with the increase of an atomic number of a material. For Tungsten, it is substantially greater ($r_W/r_{Al} \approx 5.7$) than for Aluminum.

This suggests a simple qualitative explanation of the observed effect of asymmetry. Since the ranges of secondary δ -electrons are too small for their noticeable escape from the shield, the role of ionization stopping $|dE/dz|_{ion}$ reduces only to a slowing down of the e^- -beam particles which pass through a material. From the other hand, radiative stopping $|dE/dz|_{rad}$ transforms the energy of electrons into that of highly penetrating secondary bremsstrahlung. For both of Al-W and W-Al systems, principal production of bremsstrahlung occurs inside the layer of tungsten. For the W-Al

The natural measure of the photon irradiation relevant shielding efficiency is the attenuation factor k . It is defined [1,2] as the ratio of the values of any (but the same) dosimetric functionals [8] of the photon flux ϕ (e.g., the energy flux Φ , exposure X or air-kerma K) just before, and behind shielding. For definiteness, below we calculate the attenuation factor $k(E_\gamma)$ of the energy flux $\Phi(E_\gamma) = E_\gamma \times \phi(E_\gamma)$ of monochromatic photons. In these terms, $k(E_\gamma) = \Phi_0(E_\gamma) / \Phi(E_\gamma)$ where zero subscripts the primary energy flux.

The RaT code calculated $k(E_\gamma)$ of "thin" bimetallic composites Al-W and W-Al are shown in Fig. 3 for a wide range of photon energies E_γ . The data calculated for the homogenized alloy $Al_{58.3}W_{41.7}$ lie between the curves for Al-W and W-Al systems.

This figure also presents the W-Al sandwich attenuation factor measurements results [16]. They are well described by simulation for the cases of spectral lines ⁵⁷Co (122 and 136.5 keV). A little bit worse agreement is found for the 59.5 keV line of Americium ²⁴¹Am.

This is probably due to ~10% variance (which was omitted in our model) of the thickness of the foils used for measurements. In general, the agreement of simulation and experimental data is quite satisfactory.

As expected, the attenuation factors of Fig. 3 generally increase with decreasing of E_γ but manifest a resonant behavior near the energies of the absorption edges of Tungsten. For our simulation statistics, $\sim 10^8$ histories of primary photons per each E_γ , the Monte Carlo estimation r.m.s. statistical error is smaller than the size of the Fig. 3 markers. Therefore, there exists the statistically valid difference of attenuation factors $k^{(Al-W)}(E_\gamma)$ and $k^{(W-Al)}(E_\gamma)$ for all E_γ . Note that mostly $k^{(Al-W)}(E_\gamma) > k^{(W-Al)}(E_\gamma)$. Thus, similar to the above considered case of electron irradiation, the asymmetry of shielding efficiency takes place. As a whole, the “light-to-heavy” combination is preferable.

To quantify the observed effect, let’s introduce the asymmetry factor $\eta(E_\gamma) = k^{(Al-W)}(E_\gamma) / k^{(W-Al)}(E_\gamma)$. Its energy dependence is shown in Fig. 4(a) and is supplemented, in Fig. 4(b), with the results obtained at the simulation of the scaled “thick” system. Besides, these plots’ open markers indicate the ratio $\eta_{\text{eff}}(E_\gamma) = k^{(Al-W)}(E_\gamma, t = t_{Al} + t_W) / k^{(\text{eff})}(E_\gamma, t_{\text{eff}})$ where $k^{(\text{eff})}$ is the attenuation factor of the t_{eff} thick mass-equivalent slab of effectively homogenized alloy $Al_{58.3}W_{41.7}$.

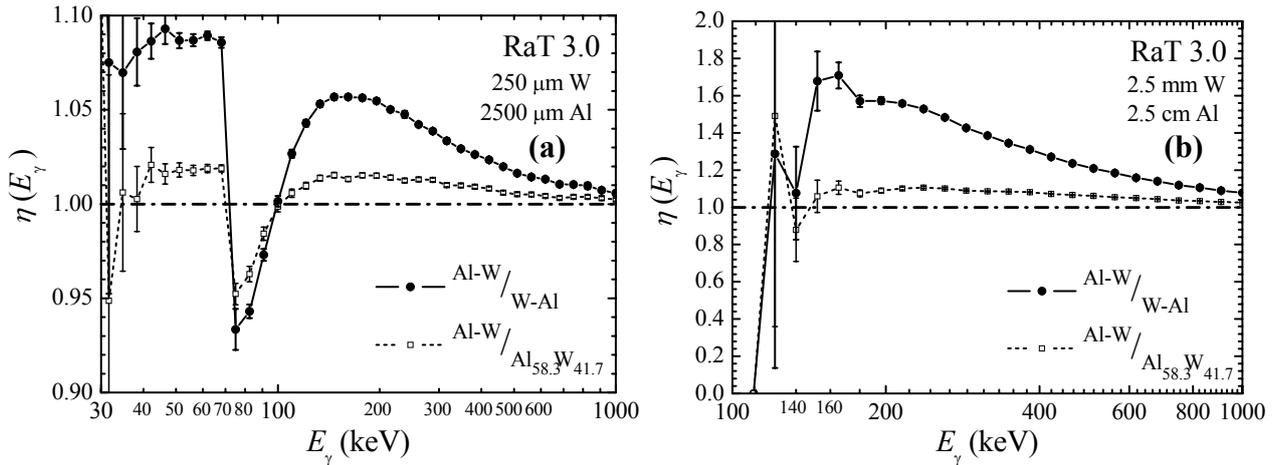


Fig. 4. Photon energy dependencies of the asymmetry factor $\eta = k^{(Al-W)} / k^{(W-Al)}$ (●) and the heterogeneity ratio $\eta_{\text{eff}} = k^{(Al-W)} / k^{(\text{eff})}$ (□) for monochromatic photons attenuation by “thin” (a) and “thick” (b) dual layer bimetallic composites of aluminum and tungsten.

The data of Fig. 4 reveal several important patterns.

First, $\eta_{\text{eff}}(E_\gamma) \neq 1$. The heterogeneous and homogenized systems data divergence indicates the significant impact of the shielding layered heterogeneity on the attenuation of photons. It is also clear that the curves for multilayer systems $(Al-W)_n$ shall lie between those of the dual layer and the homogenized systems tending to the latter one when $n \rightarrow \infty$.

Secondly, $\eta(E_\gamma)$ increases with the increase of the laminated shielding total thickness t . The asymmetry is relatively small, less than 10%, in the “thin” system (the experimental measurements [16] gave a rough estimate of the effect of ~5% at $E_\gamma < 100$ keV). In the “thick” system, the effect is grown in magnitude to about 70% at $E_\gamma \approx 160$ keV.

Finally, $\eta(E_\gamma) < 1$ for the “thin” system in the upper vicinity $E_\gamma \approx 75 \div 100$ keV of the photoabsorption K -edges of Tungsten. The $W-Al$ system is more efficient there with respect to its protective properties.

All these features cannot own to the attenuation of an uncollided energy flux of primary photons. It obeys [1,2,8] the exponential Beer’s law $\Phi^{(\text{prim})}(E_\gamma, t) = \Phi_0(E_\gamma) \cdot \exp[-\mu(E_\gamma) \cdot t]$ where t is a uniform slab thickness, $\mu(E_\gamma) = \lambda^{-1}(E_\gamma)$, cm^{-1} , is the linear attenuation coefficient of its material (the $\mu(E_\gamma)/\rho$ data for various media can be found, e.g., in ref. [24]), $\lambda(E_\gamma)$ is the photon’s mean free path length (MFP). Since the attenuation factor $k^{(\text{prim})}(t) = \Phi_0 / \Phi^{(\text{prim})}(t) = e^{\mu t} = e^{t/\lambda}$ at each E_γ , the attenuation factor of a laminated composite having $\mu_i \neq \mu_j$, ($i \neq j$) in each i^{th} of n layers of thickness t_i is

$$k_n^{(\text{prim})}\left(\sum_{i=1}^n t_i\right) = \exp\left(\sum_{i=1}^n \mu_i \cdot t_i\right) = \prod_{i=1}^n e^{\mu_i \cdot t_i} = \prod_{i=1}^n k_i^{(\text{prim})}(t_i).$$

As a product, it is the layers alternation order independent.

Therefore, the asymmetry is absent to the 1st order of the number of photons interaction events in the laminated shielding. It can be explained only taking into account the secondary effects of photons scattering and production of secondary radiations. The common practice of shielding calculations [1–3] treats these effects phenomenologically by the introduction of the so called buildup factors $B[\mu(E_\gamma) \cdot t] > 1$ which are pre-calculated, for a set of conventional shielding materials, in such a way that $\Phi(E_\gamma, t) = \Phi^{(\text{prim})}(E_\gamma, t) \times B[\mu(E_\gamma) \cdot t]$ in a homogeneous shield. Then, for our dual layer system, the asymmetry $\eta = k^{(Al-W)} / k^{(W-Al)} = B^{(W-Al)} / B^{(Al-W)} \neq 1$ arises if $B^{(W-Al)} \neq B^{(Al-W)}$. Besides, it can be due to some other effects of photon scattering and re-emission such as, e.g., their backscattering from the front surface of a shield.

These considerations are confirmed in our modeling. The RaT code calculated energy dependencies of the buildup factor $B(E_\gamma)$ and energy albedo $R_E(E_\gamma)$ for bi-directional photon irradiation of the “thin” system $Al-W$ are plotted in Figure 5(a,b). Though all curves are qualitatively similar, the substantial quantitative differences both of $B(E_\gamma)$ and $R_E(E_\gamma)$ are evident for the cases of $Al-W$ and $W-Al$ systems. They can be immediately confronted with the asymmetry

observed in Fig. 4.

Secondary effects are noticeable ($B > 1$) already in a “thin” laminate. They are much more significant in a scaled “thick” system having attenuation factors $k \sim 10^5$ and the layer thicknesses t_{Al} and t_W which substantially exceed the MFPs $\lambda(E_\gamma)$ for all photon energies E_γ under consideration. This explains the much greater values of the asymmetry factors $\eta(E_\gamma)$ clearly seen in Fig. 4(b).

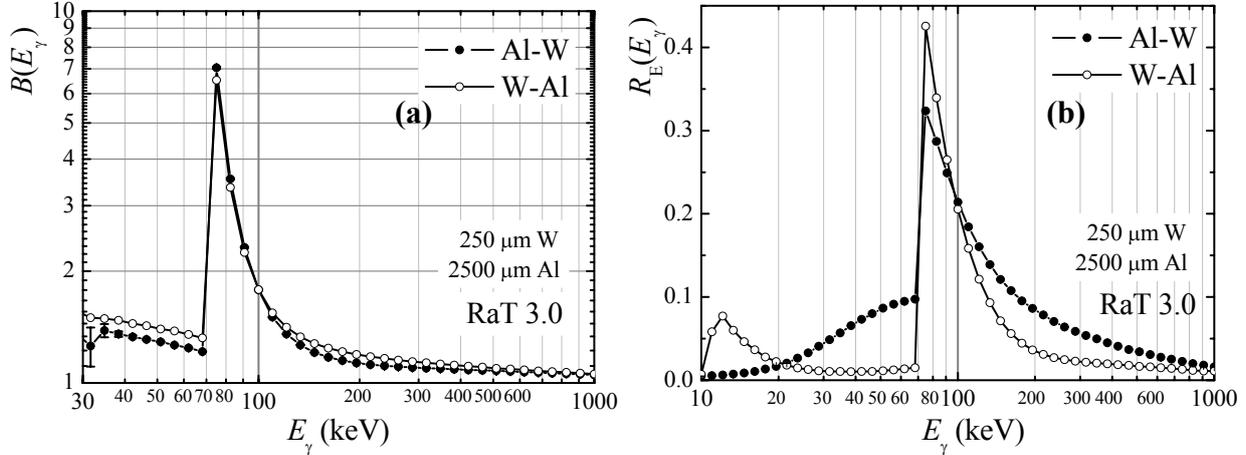


Fig. 5. Energy E_γ dependencies of buildup factors $B(E_\gamma)$ (a) and energy albedo $R_E(E_\gamma)$ (b) for photon irradiated dual layer bimetallic composites Al–W (O) и W–Al (●).

Correlating the Figs. 4(a) and 5(b) data quantitatively, we also found that $\eta(E_\gamma) \approx (1 - R_E^{(W-Al)}(E_\gamma)) / (1 - R_E^{(Al-W)}(E_\gamma))$ for γ -quanta of sufficiently high $E_\gamma \gg 10^2$ keV in a “thin” system. No such a correlation is observed for the “thick” system of Fig. 4(b) up to $E_\gamma = 1$ MeV. This is easy to explain if we introduce the reflectance $R \equiv R_E(E_\gamma)$, the transmittance $T(E_\gamma)$, and the shielding absorbed fraction $A(E_\gamma)$ of radiation energy flux in such a way that $R + A + T = 1$. Since, by definition, $k = T^{-1} = (1 - R - A)^{-1} \equiv (1 - R)^{-1} \times [(1 - R) / (1 - R - A)] \equiv (1 - R)^{-1} \times [(T + A) / T] \equiv (1 - R)^{-1} \times (1 + A/T)$, the necessary and sufficient condition of the observed correlation consists in the smallness $A/T \ll 1$ of the share A of absorbed radiation as against T , that of radiation passed through the shield. This is satisfied only in rather thin systems having $t \sim \lambda(E_\gamma)$ and $k(E_\gamma) \sim 1$, the case of our “thin” structure. In this case, the asymmetry effect is mainly due to the enhanced reflectance of the Al–W system. The “asymmetry–albedo” correlation is broken either at sufficiently low E_γ or in thick ($t \gg \lambda(E_\gamma)$, $k(E_\gamma) \gg 1$) shields. In such cases, $A/T \gg 1$ and the asymmetry is mainly due to the difference in absorption.

In Fig. 5, the attention should be drawn to the abnormally high values of buildup and backscattering factors in the vicinity of the K -series photoabsorption edges of Tungsten just above the $K_{\beta 2}$ line energy, 69.088 keV. The anomaly of energy albedo is also well traced at E_γ above the L -series edges energies, 8–12 keV. It is very probable that this determines the anomalous behavior of the asymmetry factors $\eta(E_\gamma)$ of Fig. 4(a) in the correspondent range of photon energies.

To clarify these fine details of the asymmetry effect foundation, we calculated, by means of the RaT code, the energy spectra of the photon energy flux behind “thin” Al–W и W–Al laminates for two photon energies, $E_\gamma = 220$ keV and 75 keV, which lie far from, and in the upper vicinity of the photoabsorption edge, respectively. The results are presented in Fig. 6(a,b). Smaller values of the spectral density, *esp.* in a high-energy range $E_{out} \sim E_\gamma$ which mainly contributes to the transmitted photons energy flux $\Phi(E_\gamma)$, correspond to better protective properties of the laminated shielding.

To understand the Fig. 6(a) spectra, one should note that the cross-section of incoherent Compton scattering exceeds the photoabsorption cross-section above $E_\gamma \approx 50$ keV in Al while only above $E_\gamma \approx 500$ keV in W [24]. This means that Aluminum is predominantly the Compton scatterer while Tungsten is mainly an absorber of 220 keV photons.

At energies E_{out} far above the K -edge of Tungsten, the Fig. 6(a) W–Al system relevant spectrum manifests the distinctive features of the Compton scattering of those photons which had not been absorbed in the tungsten layer. Indeed, according to the Compton effect kinematics, the final energy E' of a E_γ energy primary photon single scattered at an angle θ is $E'(E_\gamma, \theta) = E_\gamma m_e c^2 / \{E_\gamma (1 - \cos \theta) + m_e c^2\}$ where $m_e c^2 = 511$ keV is the rest energy of electron. The energy E' is minimal at sideways scattering, $\theta = \pi/2$. In our case, $E'(220 \text{ keV}, \pi/2) = E_{min} \approx 154$ keV.

Both spectral densities of Fig. 6(a) leap down at the scattered photon energy $E_{out} = E_{min}$. However, the single scattering peak at $E_{out} \approx 160$ keV $> E_{min}$ is observed only for the W–Al system. It is absent in the spectrum of the Al–W system where scattered photons are efficiently absorbed in tungsten. At $E_{out} \approx 100$ keV, the broader peak of double Compton scattering is seen in the W–Al spectrum. This peak is also lost in the Al–W system where multiply scattered photons, along with their enhanced absorption in W, can scatter back from Al and contribute to the Fig. 5(b) albedo. At $E_{out} > 70$ keV, all these effects make the transmitted photons spectral density lower for the Al–W system. In Fig. 4(a),

this results in the asymmetry factors $\eta(E_\gamma) > 1$ at sufficiently high E_γ .

In the low-energy part, the Fig. 6(a) spectra are complicated because of secondary fluorescence of Tungsten. This has an opposite effect on the shielding transmittance asymmetry, and is illustrated in detail in Fig. 6(b).

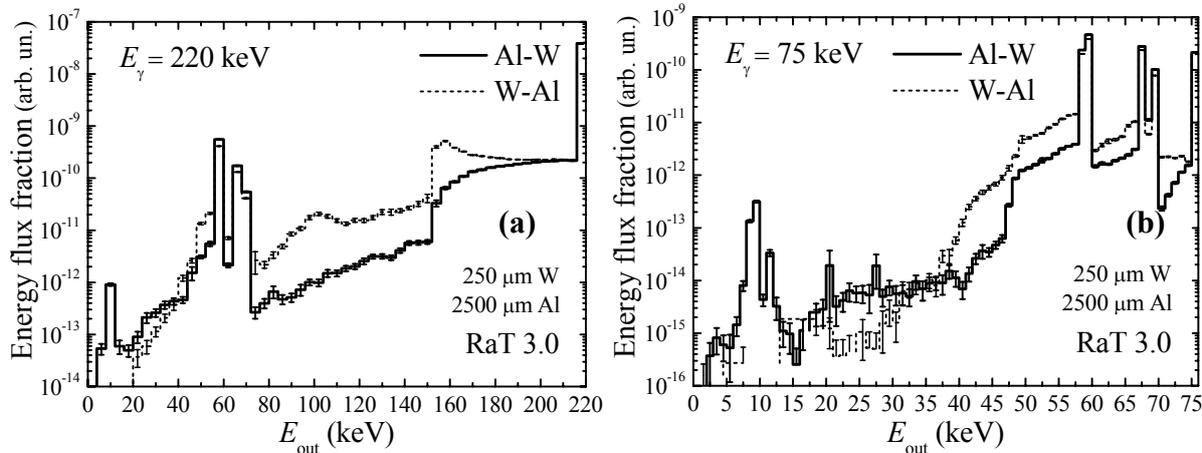


Fig. 6. Spectral distribution of the energy flux of photons of different energies E_{out} behind the laminated composites Al–W (bold curves) and W–Al (dashed curves) irradiated by monochromatic photons of energies $E_\gamma = 220$ keV (a) and 75 keV (b).

For $E_\gamma = 75$ keV, even the small-angle ($\theta \ll 1$) Compton scattering of primary photons can shift their energy by $6 \div 8$ keV down to the energies of Tungsten K -series photoabsorption edges. Resonantly absorbed, these scattered photons induce the emission of fluorescent radiation having a discrete energy spectrum. The peaks in the high-energy part of Fig. 6(b) (also traceable in the low-energy part of Fig. 6(a) as a result of multiple Compton scattering of 220 keV primaries) correspond to different spectral lines of this X-ray response of the high- Z layer. The peak channel energies E_{out} agree well with those of $W-K_{\beta 1}$ (69.088 keV) and $W-K_{\beta 2}$ (67.248 keV) spectral lines as well as those of K_α -series ($\approx 58 \div 59$ keV) for the strongest peaks. The $\sim 10^{2-3}$ times weaker fluorescent response of the Tungsten L -series is also well resolved in the low-energy part $E_{out} = 8 \div 12$ keV of the emission spectrum.

Of key importance is that the X-ray yield of “thin” dual layer laminate is higher for Al–W system in all spectral peaks of Fig. 6(b). This is because of two reasons. First, the tungsten layer’s effective thickness in the Al–W system becomes greater than the geometrical thickness t_w for photons Compton scattered in the preceding aluminum layer. This enhances the photoabsorption yield in tungsten. Secondly, some part of fluorescent photons emerged from the preceding tungsten layer of the W–Al system is absorbed in the successive layer of aluminum. Added in phase, both these effects result in the Fig. 4(a) asymmetry factor $\eta(E_\gamma) < 1$ just above the Tungsten photoabsorption edge energy.

Besides, the high flux of fluorescent X-ray photons explains the anomalously high values of the buildup factor $B(E_\gamma)$ in this range of energies (see Fig. 5(a)) while the abnormally high energy albedo $R_E(E_\gamma)$ of Fig. 5(b) is predetermined, in this energy region, by their practically isotropic angular distribution.

Discussion

The observed asymmetry effect justifies that the selection of a suitable alternation of layers of light and heavy materials can improve the efficiency of protection against both the electron and the photon irradiation. In both cases, the heterogeneity of the laminated composite affects only the characteristics of scattered and secondary radiations. Our calculations suggested that the “low-to-high- Z ” sequence with increasing atomic number of the material is generally preferred in respect of the minimization of their production yield. However, this preference is of the essentially different physical reasons for these two cases of charged and neutral particles irradiation.

For electron irradiation, the “low-to-high- Z ” sequencing allows suppression of the parasitic bremsstrahlung in the high- Z material by reason of the prior ionization slowing-down of the e^- -beam in the layer of low- Z material which mainly plays a role of a beam energy damper. Obviously, this scenario is not something new since Al–W or Al–Pb composites are used for this reason, and for decades, in space, e.g., in the design of manned spacecrafts [9]. In our simulation, the prevailed role of electrons stopping over that of their scattering is confirmed by the similarity of the shapes of bremsstrahlung spectra from Al–W and W–Al systems (see Fig. 2) which differ only by the photons yield magnitude.

The photon irradiation scenario is much less straightforward. On the one hand, the most dangerous high-energy γ -quanta are better absorbed in the “low-to-high- Z ” structure by reason of the enhanced photoabsorption, in a high- Z layer, of those photons which have been heretofore Compton scattered in the low- Z layer material. This also promotes their enhanced backscattering off the shield. However, the inverse “high-to-low- Z ” grading is more suitable for protection against X-rays because of suppression of resonance re-emission of fluorescent photons.

The natural idea [7,10] to combine the benefits of these two options can be embodied into the innovative designs of multilayer ($n > 2$) laminated composite shielding. One of such designs is considered below in the present paper.

ASSESSMENT OF THE RADIATION PROTECTION EFFICIENCY OF THE ATOMIC NUMBER PROFILED MULTILAYER COMPOSITE

The system under simulation consists of nine single-element metal layers positioned, in the direction of radiation propagation, in the following order:

$$\text{Ti}_{0.2\text{ mm}}^{Z=22} \rightarrow \text{Ni}_{0.1\text{ mm}}^{Z=28} \rightarrow \text{Cu}_{0.1\text{ mm}}^{Z=29} \rightarrow \text{Nb}_{0.2\text{ mm}}^{Z=41} \rightarrow \text{Cu}_{0.1\text{ mm}}^{Z=29} \rightarrow \text{W}_{0.3\text{ mm}}^{Z=74} \rightarrow \text{Cu}_{0.1\text{ mm}}^{Z=29} \rightarrow \text{W}_{0.3\text{ mm}}^{Z=74} \rightarrow \text{Cu}_{0.1\text{ mm}}^{Z=29}$$

Here superscripts denote the atomic numbers of the materials of layers while subscripts are their thicknesses.

At first, the layer material atomic number increases monotonically. Then this is followed by the alternating layers of heavier (Nb,W) and lighter (Cu) materials. The whole structure is an implementation of the “low-to-high-Z” option. It is similar to the Al–W system of the previous section with the peculiarity that the heavy metal layers alternate with thin (0.1 mm) layers of lighter copper. The functionality of these copper layers is of two kinds. First, they promote better adhesion at the metal interfaces and thereby improve the mechanical properties of the composite. Secondly, these local “high-to-low-Z” substructures act as scatterers and absorbers of fluorescent X-rays and secondary electrons from the heavy layers. Obviously, the main role plays the last copper layer located behind a thicker (0.3 mm) layer of tungsten.

The mass thickness ρt of the shielding structure was chosen to be equal to the CSDA range of 3 MeV electrons in Aluminum, $R_{Al}(3\text{ MeV}) = 1.868\text{ g/cm}^2$ according to the ESTAR code calculation. This corresponds to the total thickness $t = 1.5\text{ mm}$ of the laminated composite and to the thickness $t_{Al} = 6.927\text{ mm} = 4.614 \cdot t$ of the mass-equivalent aluminum slab.

The objective of this section is to describe the passage of relativistic electrons with energies E_e up to 3 MeV through this multilayer structure by means of the MC simulation and to evaluate, in such a way, its shielding efficiency.

The RaT code calculated depth z profiles of the radiation energy absorption rate are depicted with open markers in Fig. 7(a) for incident energies $E_e = 1, 2,$ and 3 MeV . The solid curve indicates the PENELOPE code simulation data for $E_e = 2\text{ MeV}$. They agree well with those of RaT modeling. All these data describe the beam energy absorption integrally considering both the stopping of primary electrons and the attenuation of the produced bremsstrahlung γ -quanta. The energy loss rate slowdown by the end of the target qualifies it as a perfect electron absorber of a reasonably chosen thickness. Jumps at the boundaries of layers are due to different electron stopping powers and photon energy absorption coefficients of their materials. These jumps are especially great in the vicinity of Cu–W–Cu interfaces.

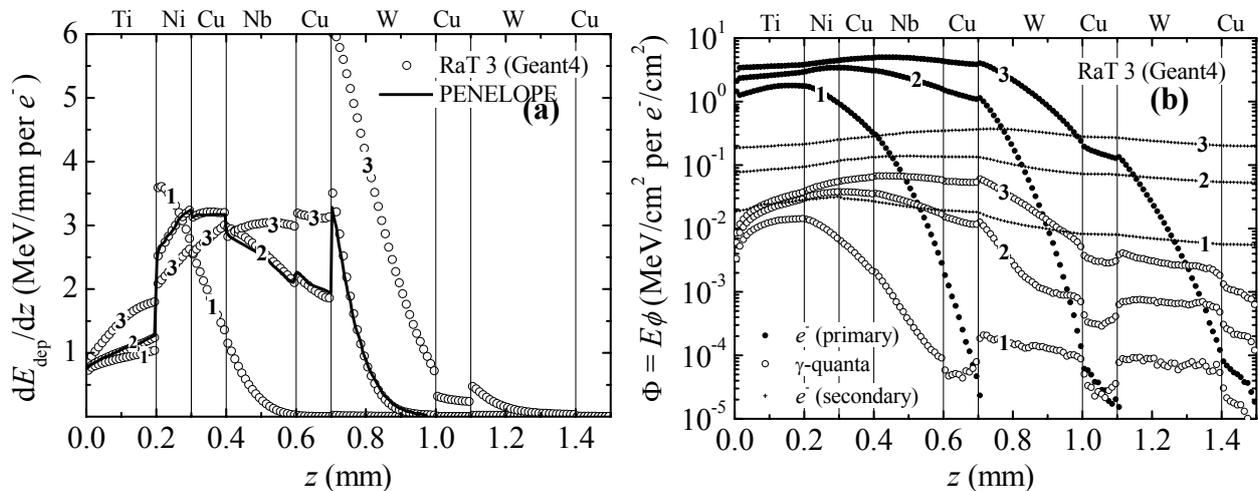


Fig. 7. The depth z dependencies of the electron beam energy absorption rate $|dE_{dep}/dz|$ (a) and energy fluxes Φ of primary and secondary electrons and bremsstrahlung γ -quanta (b) inside a laminated composite shielding TiNiNbWCu. The overlaying numbers on curves denote the electron beam incident energy E_e in mega-electronvolts. The results of calculations by means of the RaT 3 (markers) and PENELOPE (solid curve in figure (a)) Monte Carlo codes.

The more detailed picture of physical processes which occur at the e^- -beam propagation through the laminated shielding is characterized by the RaT code calculated depth dependencies of the energy flux $\Phi(z)$. They are shown in Fig. 7(b) and can be used to compare the development, in the target, of various radiation components such as primary beam electrons, bremsstrahlung γ -quanta, and the accumulating secondary electrons including δ - and photoelectrons, photon Compton scattering recoil electrons, and those of γ -conversion.

The incident beam electrons mainly contribute to $\Phi(z)$ in the first layers of the target. The $\Phi(z)$ profile is shaped by the competitive effects of their stopping and scattering. The former one augments Φ due to the increase of the electrons path length in a layer. The latter one dumps electron’s energy thus reducing Φ . As a result, $\Phi(z)$ is only weakly varying there, esp. for $E_e = 2$ and 3 MeV . More in depth z , the stopping becomes dominant, and the primary electrons energy flux drops down by 5÷6 orders of magnitude to the end of the 5th layer (Cu) at $E_e = 1\text{ MeV}$, the end of the 7th one (Cu) at 2 MeV , and to the target edge at 3 MeV . This corresponds to the decrease in the beam energy down to the lower

energy threshold of the simulation (~10 eV), is fairly consistent with the profiles of Fig. 7(a), and reconfirms the optimal choice of the shield thickness. However, this does not mean the absence of the charged component of radiation behind shielding. The simulation shows that $\Phi(z)$ of secondary electrons is very weakly depth dependent. This is due to their permanent makeup by the bremsstrahlung produced in the target. At the shielding exit, the energy flux of this virtually irremovable component is about 10^{3+4} times higher than that of primary electrons. Finally, in considering the most problematic γ -component of $\Phi(z)$, we see that its production in the frontal, light, layers is more than compensated by its attenuation in the subsequent heavy layers of the laminate. Again, this demonstrates the close to optimal balance of its composition and construction which prevent turning of the electron beam protector to its converter into γ -radiation.

In total, this corollary is illustrated in Fig. 8 which shows the results of the PENELOPE and RaT codes calculations (note, again, their good agreement with each other) of the energy dependence of the conversion factor, the ratio of the total energy of γ -radiation behind shielding and the electron beam energy E_e , in comparison with the simulation data for a tungsten slab of the same thickness $t_w = 1.5$ mm. One can see that the multilayer structure has the smaller conversion ratio than that of tungsten and, therefore, should be a more efficient shielding when irradiated with electrons.

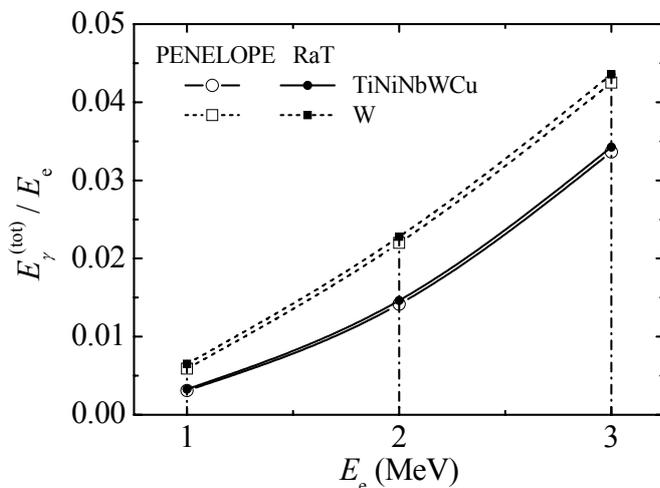


Fig. 8. Electron energy E_e dependencies of the e -to- γ energy conversion ratio for 1.5 mm thick laminated composite TiNiNbWCu and tungsten slab of the same thickness. Simulation by means of PENELOPE (open markers) and RaT (closed markers) MC codes.

More reasoned evaluation of the shielding efficiency can be obtained by calculating the absorbed dose D in the objects to be protected. This requires either a comprehensive simulation of the target system “shielding + object” or calculations made in some reference conditions. The former task is quite doable but goes beyond the scope of this paper. The latter approach is adopted in the present study. We focus not so much on the magnitudes of dosimetric quantities (which are the radiation source strength and exposure time dependent) but on the comparison of calculation results obtained, under identical conditions, for the TiNiNbWCu laminated shield and for other shielding materials. We chosen to compare with the above studied single-element materials, lightweight aluminum (an electronic protector) and heavy tungsten (a gamma-protector). The correspondent results of calculations are shown in Figs. 9 to 10, and are discussed hereinafter.

Fig. 9 shows the RaT code calculated energy dependences of the photon kerma rate (per one electron of an incident e^- -beam) in the air behind shielding. The air-kerma rate \dot{K}_{air} , “the total kinetic energy of charged particles released per unit time by indirectly ionizing radiation in the volume of standard air of unit mass” [8], quantifies only the effects owing to the photon component of radiation. It scales with the exposure rate \dot{X} , Roentgens per hour, and, in dosimetry, is a conventional measure of the strength of sources of ionizing radiation and the efficiency of biological shielding [1].

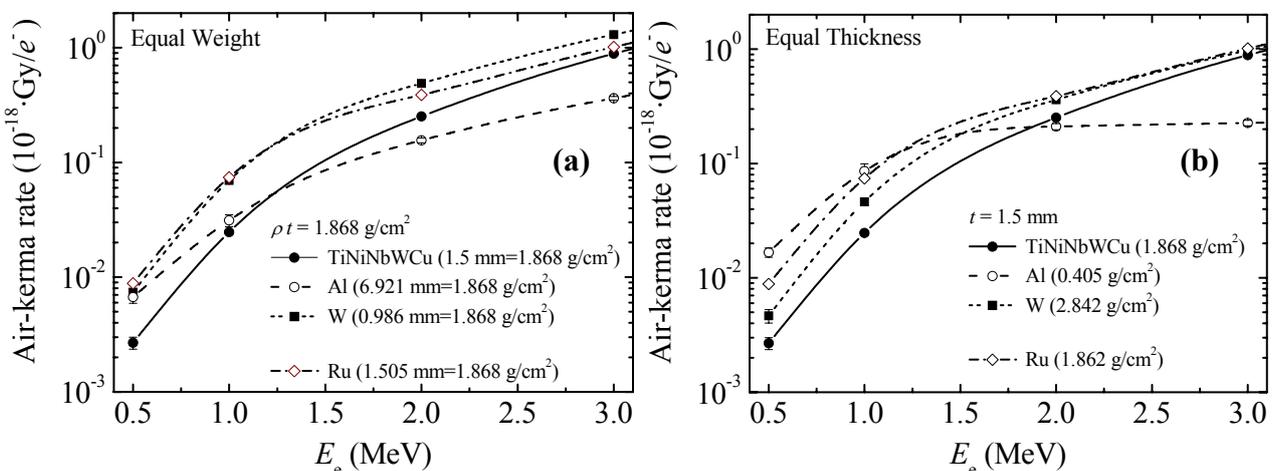


Fig. 9. Electron energy E_e dependencies of the photon air-kerma rate behind the laminated composite TiNiNbWCu shield (●) as compared with the simulation data obtained for Al (○), W (■) and Ru (◇) slabs of the same mass (a) and geometrical (b) thickness.

In Fig. 9(a), the multilayer composite simulation data are compared with those relevant to the weight-equivalent slabs of different shielding materials of the same mass thickness 1.868 g/cm^2 . Since the smaller rate means better protection, the laminated composite is much better than tungsten but yields to aluminum in \dot{K}_{air} at $E_e > 1 \text{ MeV}$ yet surpassing it at lower E_e . The reason is simple. As E_e grows, the thickness of a lightweight Al slab of the same mass is not enough to produce the same magnitude of bremsstrahlung flux the layered shield is first accumulating and then absorbs.

The picture is somewhat different if optimization is not subjected to weight but to dimensions of shielding. The data of Fig. 9(b) show that the multilayer shield outrank both W and Al slabs of the same thickness (1.5 mm). For aluminum, this is evident at $E_e \leq 2 \text{ MeV}$. At higher energies, the photon air-kerma rate comparison is radiation shielding irrelevant since the range R_{Al} exceeds the shield thickness $t_{\text{Al}} = 1.5 \text{ mm}$ starting already from $E_e \approx 800 \text{ keV}$. Therefore, the 1.5 mm thick Al slab is not suitable for protection against electrons of higher energies where it is just a filter.

Fig. 9 also presents the comparative data for ruthenium (Ru) slabs. Obviously, this rare metal is not used for radiation shielding purposes. Nevertheless, it can be considered as a natural homogeneous analogue of our heterogeneous composite TiNiNbWCu having both an effective atomic number Z_{eff} and an effectively averaged density ρ_{eff} close to the atomic number $Z_{\text{Ru}} = 44$ and the nominal density $\rho_{\text{Ru}} = 12.41 \text{ g/cm}^3$ of ruthenium, respectively.

The Fig. 9(a,b) data for both Ru slabs of equivalent mass and geometrical thickness illustrate again the essence of the heterogeneity effect on a laminated composite shielding efficiency gain. In Fig. 9, the laminate looks much better than its homogeneous analogue which is clearly far from optimal protection against relativistic electrons of all energies considered. Indeed, despite of its much smaller Z (44 vs. 74), ruthenium is almost only as efficient as tungsten.

Since compact and lightweight laminated composites are frequently targeted to the radiation shielding of semiconductor detectors and electronics in aerospace engineering [6,7], we also evaluated, by means of the RaT code simulation, the reference dosimetry quantities valuable for these applications, the rates of Total Ionization Dose (TID) \dot{D}_{Si} and photon kerma \dot{K}_{Si} in Silicon (Si, $Z_{\text{Si}} = 14$, $\rho_{\text{Si}} = 2.33 \text{ g/cm}^3$). The calculation results are shown in Fig. 10.

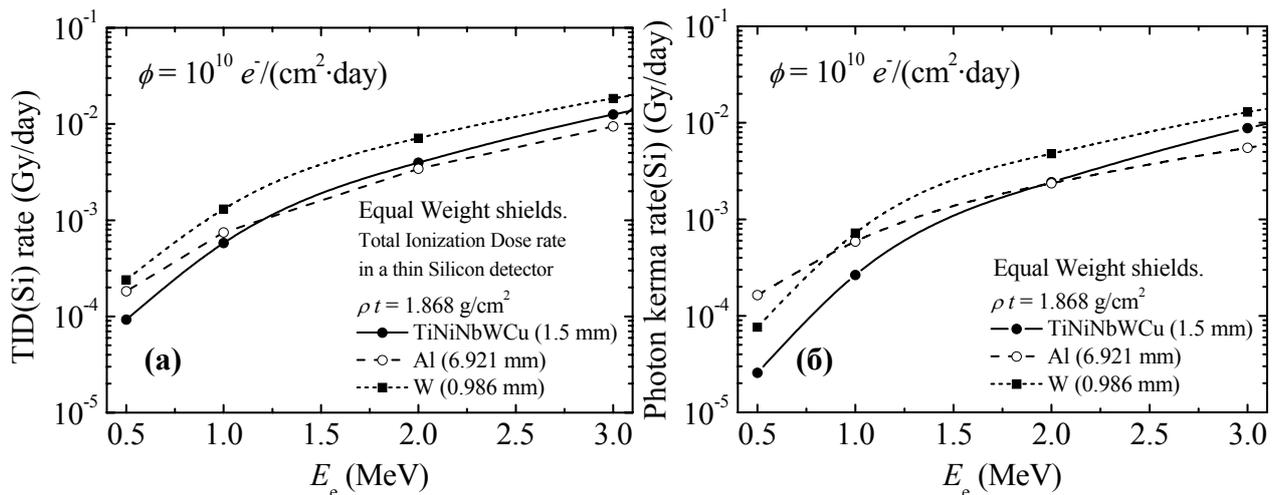


Fig. 10. The electron energy dependencies of the Silicon total ionization dose (a) and photon kerma (b) rates behind the TiNiNbWCu laminated composite shielding (●) compared to those of W (■) and Al (○) slabs of the same mass thickness.

To avoid ambiguities arising from the non-trivial spatial distribution of doses absorbed inside a massive detector, both TID and kerma rates were detected in a negligibly thin ($0.1 \mu\text{m}$) Si layer located in vacuum immediately behind the shielding. In Fig. 10, the characteristic range of their magnitudes ($\sim 10^{-5} \div 10^{-2} \text{ Gy}$ per day) corresponds to the characteristic value, $\phi = 10^{10} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ per day, of an electron flux at Low-Earth Orbits (LEO) outside the radiation belts [11].

The Total Ionization Dose (TID) \dot{D} is a key parameter the accumulation of undesired irradiation effects in semiconductors is scaled with. Along with the contribution of the photon component of radiation, the charged components of a shielding outer surface emerged radiation contribute to TID. For this reason, $\dot{D}_{\text{Si}} \geq \dot{K}_{\text{Si}}$ in Fig. 10. This difference is substantial in a Silicon detector surface layer comparable in thickness with the ranges of a shielding emitted secondary electrons but thin as compared with the characteristic MFPs λ of the secondary bremsstrahlung γ -quanta.

For all considered energies of electrons, the comparison of the TiNiNbWCu system TID relevant data of Fig. 10(a) with those of W and Al shields of the same mass per unit area shows that our laminated composite substantially surpasses the tungsten shield and is practically equivalent to that one made of the common material, Al, applied in space.

However, it is worth noting that the aluminum shielding of the same protective efficiency and weight is almost

five times thicker (6.921 mm vs. 1.5 mm). Therefore, the developed and vacuum hot rolling solid phase welding fabricated laminated composite shielding has good prospects of application in environments where the simultaneous optimization of radiation shielding by weight, dimensions, and physical and mechanical properties is crucially important.

CONCLUSIONS

This paper presented the consistent procedure of the laminated shielding calculation analysis by means of the Monte Carlo reference code PENELOPE and the original code RaT 3 (NSC KIPT) radiation transport simulation. As against the traditional conservative semi-analytical calculations, its benefits are (i) the detailed reproduction of the radiation shielding design features in the calculation model and (ii) the possibility to obtain the approximation-free and well-founded quantitative results which take into account all the processes of interaction of both primary and internally generated secondary radiations with shielding medium using the up-to-date banks of atomic and nuclear data.

Two interdependent problems were solved within this procedure, (i) a fundamental problem of identification and analysis of physical reasons influencing the shielding efficiency and (ii) an applied problem of calculations of reference dosimetric quantities of transmitted radiation with an adequate view of its complex spectral composition. Our results confirm the potential of this approach by the case of assessment of shielding efficiency of dual and multi-layer composites designed for protection against electrons of moderately relativistic energies, X- and γ -rays.

At detailed simulations of the (e^- , γ)-beams passage through a simple bimetallic dual layer system Al \leftrightarrow W we found an asymmetry of the energy spectrum and dose relevant quantities depending on the order the beam passes through the shielding layers. The “low-to-high- Z ” ordered shielding Al–W was generally rated as the most efficient one.

We identified the physical reasons of the observed asymmetry. Commonly to both e^- -beam and γ -irradiation, it arises only due to secondary radiation (bremsstrahlung, or scattered and fluorescent) produced by a primary beam. Thus, the magnitude of the effect increases with increasing of the layers thicknesses measured, for γ -irradiation, in the mean free path lengths of the photons of characteristic energies, and probably in radiation lengths for the electron incidence.

Other reasons depend on the kind of irradiation and deserve special attention in the photon case. It was shown that the heterogeneity driven asymmetry is maximal for the dual layer Al–W shielding. The shielding efficiency reduces at homogenization or at the increase of the number of Al/W periods. The effect is due to photons Compton scattering in the front lightweight layer (Al) followed by their enhanced absorption in the rear heavy layer (W) or by their backscattering removal. The gain in absorption dominates in thick shields having the attenuation factors $k \gg 1$. The γ -albedo enhancement prevails in thin ($k \sim 1$) systems. We also revealed that the asymmetry is strongly spectrally sensitive i.e. an optimal “scatterer \leftrightarrow absorber” arrangement depends on the photon energy. In the upper vicinity of the absorber’s photoabsorption edges, the W–Al shielding is more efficient by reason of the resonance fluorescent X-ray yield reduction.

The innovative design of the laminated composite shielding manufactured, in NSC KIPT, by the method of the solid phase vacuum hot rolling joint of layers of materials conforms to all these regularities. The multilayer atomic number shaped structure accounts for both a general trend towards greater efficiency of the “low-to-high- Z ” grading and a special use of “high-to-low- Z ” grade to suppress the fluorescence response of the absorber layers.

Its Monte Carlo modeling based design assessment has been accomplished by means of the RaT code radiation transport calculations. Their results were successfully benchmarked against those of the reference code PENELOPE.

This allowed us to quantify, in great detail, the development of radiation cascade in the laminated shielding materials. The detailed picture of the passage, development, and absorption of both electron and bremsstrahlung components in the multilayer shield has been obtained. At last, the calculations of photon air-kerma and Si-absorbed dose rates behind a laminated composite shielding and the comparison with other reference shielding materials (W and Al) have shown that its design is close to optimum for protection against electrons with energies up to 3 MeV when both the shielding weight and dimensions are simultaneously constrained in possible applications.

It can be concluded that the combination of the NSC KIPT advanced techniques of laminated composites manufacturing with the computer-aided prediction, assessment and optimization of their protective efficiency opens up rich possibilities of creating novel radiation protection systems, and is a promising direction for further R&D.

Finally, it is worth noting that the most computationally demanding problem of the laminated composite shielding efficiency optimization still remained beyond the scope of the present paper. To solve it efficiently, it is extremely desired to narrow the extent of Monte Carlo simulations. For this purpose, of great interest is the development and application of the simplified 1D models of different kinds of radiation production and attenuation in the multilayer structures. This went us back to the conventional semi-analytical approach to the shielding dosimetry [1]. The models can make use of certain parameterizations of electrons [23,25] and photons [24] interaction with matter and shall incorporate the operations research techniques (*e.g.*, dynamical programming, or neural networks) for maximization of the shielding efficiency regarding it as a criterion function. The obtained guess design can serve as the reasonable initial problem setup for the subsequent Monte Carlo simulation. The high-precision technique of this paper can be applied to the final design stage for fine optimization of the laminated shielding in view of all fine details of its specific applications.

The authors are grateful to Dr. A.V. Mazilov for providing them with the experimental data used, for comparison, in Fig. 3 of the present paper.

REFERENCES

1. Engineering Compendium on Radiation Shielding, Volume 1: Shielding Fundamentals and Methods / Ed. by R.G. Jaeger. – Berlin, Heidelberg, New York: Springer-Verlag, 1968. – 537 p.
2. Shultis J.K., Faw R.E. Radiation Shielding. – Upper Saddle River, NJ: Prentice Hall PTR, 1996. – 533 p.
3. Stabin M.G. Radiation Protection and Dosimetry: An Introduction to Health Physics. – New York: Springer Science + Business Media, LLC, 2007. – 386 p.
4. Stewart D.Y., Harrison P.F., Morgan B., Ramachers Y. Radiation Shielding for Underground Low-Background Experiments // Nucl. Instr. Meth. – 2007. – Vol. A571, No 3. – P. 651–662. [arXiv:nucl-ex/0607032v1 31 Jul 2006].
5. Singh V.P., Veerendra D.D., Dileep B.N., Sheikh Q., Managanvi S.S., Badiger N.M., Bhat H.R. Background Minimization of HPGe Detector by Passive Graded Shielding // Int. J. of Low Radiation. – 2011. – Vol. 8, No. 4. – P. 313–328.
6. Fan W.C., Drumm C.R., Roeske S.B. Scrivner G.J. Shielding Considerations for Satellite Microelectronics // IEEE Trans. Nucl. Sci. – 1996. – Vol. 43, No. 6. – P. 2790–2796.
7. Spieth B.D., Qassim K.S., Pittman R.N., Russell D.A. Shielding Electronics behind Composite Structures // IEEE Trans. Nucl. Sci. – 1998. – Vol. 45, No. 6, pt. 1. – P. 2752–2757.
8. Greening J.R. Fundamentals of Radiation Dosimetry / 2nd Ed. – New York: Taylor & Francis, 1985. – 190 p.
9. Barnea G., Berger M.J., Seltzer S.M. Optimization Study of Electron-Bremsstrahlung Shielding for Manned Spacecraft // J. Spacecraft Rockets. – 1987. – Vol. 24, No. 2. – P. 158–161.
10. Kesapradist J., Mehlman M. Laminated Lightweight Radiation Shielding Materials. – U.S. Patent EP1120795 A1, Jan. 24, 2000.
11. Stassinopoulos E.G. The Geostationary Radiation Environment // J. Spacecraft Rockets. – 1980. – Vol. 17, No. 2 – P. 145–152.
12. Borts B.V., Vanzha A.F., Lopata A.T., Neklyudov I.M., Shevchenko S.V. Investigation of Welding Processes of Multilayer Structures Composed from Different Chemical Composition Crystallites by Vacuum Hot Rolling // Problems of Atomic Sci. and Tech. Ser.: Rad. Damage Phys. and Rad. Mat. Sci. – 2005. – Iss. 5(88). – P. 156–158.
13. Sakcharov V.M. A Method for Estimating the Bremsstrahlung Dose into Spacecraft from Incident Electrons // Radiation Measurements. – 1994. – Vol. 23, No. 1. – P. 53–56.
14. Lazurik V., Lisitskiy A., Pismeneskiy S., Rogov Yu. Effects of Inhomogeneity in Plane Shielding Construction // IEEE Trans. Nucl. Sci. – 2000. – Vol. 47, No. 6. – P. 2132–2134.
15. Metropolis N., Ulam S. The Monte Carlo Method // J. Amer. Stat. Assoc. – 1949. – Vol. 44, No. 247. – P. 335–341.
16. Dyuldy S.V., Bratchenko M.I., Mazilov A.V. On the Asymmetry of Attenuation of Gamma Radiation by Heterogeneous Systems of Compton Scatterers and Absorbers // Abstr. of the 6th Conf. on High Energy Phys., Nucl. Phys. and Accelerators, Feb. 26–29, 2008, Kharkov, Ukraine. – Kharkov: NSC KIPT of NAS of Ukraine, 2008. – P. 109–110.
17. Borts B.V., Bezdverniy P.N., Marchenko I.G. Computer Simulation of the Protective Properties of a Layered Material at Passage of Electrons // Proc. of the 18th Int. Conf. on the Phys. of Rad. Phenomena and Rad. Mat. Sci., Sept. 8–13, 2008, Alushta, Crimea, Ukraine. – Kharkov: “Talent-Trading”, 2008. – P. 385–386.
18. Borts B.V., Marchenko I.G., Bezdverniy P.N. Simulation of Electron Transport through the Stratified Composite Material // Problems of Atomic Sci. and Tech. Ser.: Rad. Damage Phys. and Rad. Mat. Sci. – 2009. – Iss. 2(94). – P. 175–177.
19. Baro J., Sempau J., Fernandez-Varea J.M., Salvat F. PENELOPE: An Algorithm for Monte Carlo Simulation of the Penetration and Energy Loss of Electrons and Positrons in Matter // Nucl. Instr. Meth. – 1995. – Vol. B100. – P. 31–46.
20. Salvat F., Fernández-Varea J.M., Acosta E., Sempau J. PENELOPE: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport // OECD NEA Workshop Proceedings, Nov. 5–7, 2001, Issy-les-Moulineaux, France. – Issy-les-Moulineaux: OECD NEA, 2001. – 234 p.
21. Dyuldy S.V. Computer Experiment in the Physics of Sustainable Technologies of Irradiation Processing of Materials // Bulletin of the V. Karazin Kharkiv National University № 925. Ser.: Mathematical Modeling. Information Technology. Automated Control Systems. – 2010. – Iss. 14. – P. 53–64.
22. Agostinelli S., Allison J., Amako K., Apostolakis J. et al. Geant4 — a Simulation Toolkit // Nucl. Instr. Meth. – 2003. – Vol. A22, No. 3. – P. 250–303.
23. Berger M.J. ESTAR, PSTAR, ASTAR — a PC Package for Calculating Stopping Powers and Ranges of Electrons, Protons and Helium Ions // NIST: Report NISTIR-4999, 1993. (IAEA-NDS-144, IAEA Vienna, Austria, 1993).
24. Boone J.M., Chavez A.E. Comparison of X-ray Cross Sections for Diagnostic and Therapeutic Medical Physics // Med. Phys. – 1996. – Vol. 23, No. 12. – P. 1997–2005.
25. Lazurik V., Tabata T., Lazurik V.T. A Database for Electron-Material Interactions // Rad. Phys. Chem. – 2001. – Vol. 60, No. 3. – P. 161–162.

PACS: 29.40.Wk, 85.30De, 07.85.-m

MONTE-CARLO SIMULATION OF RESPONSE OF CdZnTe DETECTORS OF BETA-RADIATION

**A.A. Zakharchenko, A.V. Rybka, L.N. Davydov, A.A. Vierovkin,
V.E. Kutny, M.A. Khazhmuradov**

*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"
1, Akademicheskaya St., 61108 Kharkov, Ukraine*

e-mail: az@kipt.kharkov.ua

Received August 10, 2014

Response functions of CdZnTe detector, developed for measurement of electron energy spectra, are investigated. The experimental response of CdZnTe detector is compared to the spectra simulated by Monte-Carlo method. A satisfactory agreement of simulated and experimental data is reached with introduction in the theoretical detector model of two fitting parameters – products of mobilities and lifetimes of electrons and holes. It is shown that the main disagreement of experimental and simulated spectra is connected to the high level of noise in the preliminary amplifier.

KEY WORDS: CdZnTe detector, beta-radiation, Monte-Carlo method, response function

МОДЕЛЮВАННЯ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО ВІДГУКУ CdZnTe ДЕТЕКТОРІВ БЕТА-ВИПРОМІНЮВАННЯ

О.О. Захарченко, О.В. Рыбка, Л.М. Давидов, А.А. Верьовкін, В.Є. Кутній, М.А. Хажмуратов

Національний науковий центр "Харківський фізико-технічний інститут"

вул. Академічна, 1, 61108 Харків, Україна

Досліджені функції відгуку CdZnTe детектора, що призначається для вимірювання спектрів енергії електронів. Вимірний експериментально відгук CdZnTe детектора порівнюється зі спектрами, розрахованими методом Монте-Карло. Задовільного узгодження розрахункових та експериментальних даних можна досягти при використанні в моделі детектора двох параметрів підгонки – добутків рухливості на середній час життя електронів та дірок. Показано, що основні розбіжності між експериментальними та розрахунковими спектрами пов'язані з високим рівнем шумів попереднього підсилювача.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: CdZnTe детектор, бета-випромінювання, метод Монте-Карло, функція відгуку

МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО ОТКЛИКА CdZnTe ДЕТЕКТОРОВ БЕТА-ИЗЛУЧЕНИЯ

А.А. Захарченко, А.В. Рыбка, Л.Н. Давыдов, А.А. Веревкин, В.Е. Кутный, М.А. Хажмуратов

Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт"

ул. Академическая 1, Харьков 61108, Украина

Исследованы функции отклика CdZnTe детектора, предназначенного для измерения энергетических спектров электронов. Экспериментально измеренный отклик CdZnTe детектора сравнивается со спектрами, рассчитанными методом Монте-Карло. Удовлетворительное согласие расчетных и экспериментальных данных достигается при использовании в модели детектора двух подгоночных параметров – произведений подвижности на средние времена жизни электронов и дырок. Показано, что основные расхождения экспериментальных и расчетных спектров связаны с высоким уровнем шумов предварительного усилителя.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: CdZnTe детектор, бета-излучение, метод Монте-Карло, функция отклика

Semiconductor compounds CdTe and CdZnTe are widely used in manufacturing of gamma-ray detectors for operation at room temperatures. Absence of additional cooling allows creating compact highly effective devices which are used for various purposes in gamma-ray spectrometry and dosimetry. The shortcoming of CdTe (CdZnTe) is a low mobility of holes that worsens detectors' energy resolution in the high energy range of gamma quanta (higher than 0.5 MeV). In order to overcome this disadvantage a number of technical solutions has been offered recently [1, 2] which allowed to reach at 662 keV (^{137}Cs gamma-ray source) the resolution which is close to a theoretical limit.

Besides the tasks connected with measurement of gamma fields, room temperature CdTe (CdZnTe) detectors also have good prospects at the registration of beta radiation. In particular, considerable interest is attracted to a problem of the extraction of beta spectra from the measurement of the mixed gamma and beta radiation [3]. Detectors of beta particles are also in demand in research of radiation protective properties of materials when there are rigid restrictions on the admissible size and weight of protective designs [4].

At measurement of electron energy spectra an ultrahigh resolution of detectors is not required. This is due to the fact that intensive quasimonoenergetic lines are present only in spectra of a few beta sources (for example, groups of closely located lines of conversion electrons in ^{137}Cs spectrum). Besides, the interaction of electrons with air (not to mention more dense environments) leads to a considerable smearing of initial lines or their total disappearance. Therefore, one can expect that in measurements of beta spectra the energy resolution requirement to detectors of high-resistance semiconductor compounds CdTe and CdZnTe (i.e. the requirement to crystal quality) may be less stringent than at registration of gamma quanta. At the same time, higher density and average atomic number of CdTe (CdZnTe)

in comparison with germanium and silicon provide more effective slowing-down of electrons in detector working volume that allows using less expensive thinner detectors.

We present below a research of a response of a planar CdZnTe detector to the irradiation from a reference $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source. The main objective of the work was a restoration by the Monte-Carlo method of the response function of CdZnTe detector to beta radiation. For comparison we use and cite here for the first time the experimental data received previously during the adjustment of a measuring channel in papers [4, 5]. Besides the electron spectra measured with an unshielded $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source, spectra of electrons, which have passed through aluminum and lead slowing-down filters, were also investigated. In all cases we compared the response functions measured with CdZnTe detector to the response functions simulated by the Monte-Carlo method. We established that satisfactory agreement of simulated and experimental response functions due to the introduction in the detector model of two fitting parameters: products of carriers mobility and average lifetime. Meanwhile, the remained observed discrepancies necessitate considerable decreasing of noise level in devices with detecting units based on CdTe (CdZnTe) crystals for registration of beta radiation below 100 keV. An agreement between experimental results and simulation data is considerably improved with the application of thin metal filters in measurements or with the increase in the lower discrimination threshold.

MEASUREMENTS OF BETA-SPECTRA

Registration of the radiation from $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source was carried out at the measuring bench created at NSC KIPT. It consists of CdZnTe detector sized $6\times 6\times 3\text{ mm}^3$, a charge sensitive preliminary amplifier (the measured ratio of charge-voltage transformation was 0.96 mV/fC), Canberra Model 2026 Spectroscopy Amplifier, the analogue-digital Canberra Model 8706 converter (ADC) and the Canberra Model 3106D power supply. The operational detector displacement voltage was $U_b = 150\text{ V}$. Efficiency of charge collection (CCE) in the CdZnTe detector at the indicated displacement voltage was about 34%. The detector was placed in the silumin case of 2 mm thickness. A beryllium window of 23 micron thickness, located in a front part of the case, allows a transmission of electrons with the minimum energy loss. Measurements of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ radiation spectrum were carried out with the reference source of beta radiation ISO-135 which was placed at about 12 mm above the detector surface. The spectrometry of ^{90}Sr is an important task [3]. Besides, a wide range of electron energies allows using this source for an assessment of radiation protective properties of different materials [4, 5].

The initial (theoretical) spectrum of the $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source is shown in Fig. 1. The data presented in Fig. 1 are the results of simulation with a universal package Geant4 [6] modeling the interaction of nuclear radiation with matter. The electron spectrum consists of two branches: the initial part up to the energy about 0.5 MeV corresponds mainly to the electrons which are formed at decay of ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28.74\text{ years}$) \rightarrow ^{90}Y . The high-energy branch of the spectrum is formed at the subsequent disintegration of ^{90}Y ($T_{1/2} = 64.1\text{ hours}$) \rightarrow ^{90}Zr [7]. At decay of ^{90}Y an insignificant number of γ -quanta (Table 1) also is formed, which do not influence essentially the general detector pulse statistics. When modeling the line of γ -quanta with energy of 1.76 MeV they were distributed over two neighbor energy sampling levels with total intensity of $(5.2 + 6.3) \times 10^{-5}$ quantum per decay that corresponds to the probability of the relevant channel of disintegration: 0.011% (Table 1).

Table 1.

Nuclide	Probability of the decay channel, %	electrons		γ -quanta
		E_{max} , keV	E_{middle} , keV	E_{γ} , keV
^{90}Sr ($T_{1/2} = 28.74\text{ year}$)	100	546.0	195.8	–
	99.989	2280.1	993.7	–
^{90}Y ($T_{1/2} = 64.1\text{ hour}$)	0.011	519.4	185.6	1760.7
	1.4×10^{-6}	93.8	25.0	2186.2

The spectrum of ISO-135 source, obtained with the above measuring bench, is shown in Fig. 2. Time of measurement was 1 hour. The energy calibration of the measuring bench (the top axis in Fig. 2) was carried out using the measurements of photopeak centroid positions in the spectra of ^{137}Cs and ^{241}Am reference gamma-ray sources (Fig. 3). The maximum energy of the registered electrons corresponds to the maximum energy of the electrons which are formed at beta-decay of ^{90}Y (2.28 MeV).

The shape of the initial section of the spectra in Fig. 2 ($E < 0.1\text{ MeV}$) essentially differs from theoretically predicted one (Fig. 1) as a result of a considerable noise level in the preliminary amplifier (equivalent noise charge (ENC) is about 400 e^- units of the electron charge, the maximum of the measured noise spectrum corresponds to energy about 100 keV). Other sections of the experimental spectrum (Fig. 2) also have some differences from the simulated spectrum of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source in Fig. 1. In particular, a shape of curve at the energy, where the spectra of electrons formed at disintegrations of ^{90}Sr and ^{90}Y ($E \approx 0.5\text{ MeV}$) come together, appears strongly blurred in comparison with the simulated spectrum in Fig. 1.

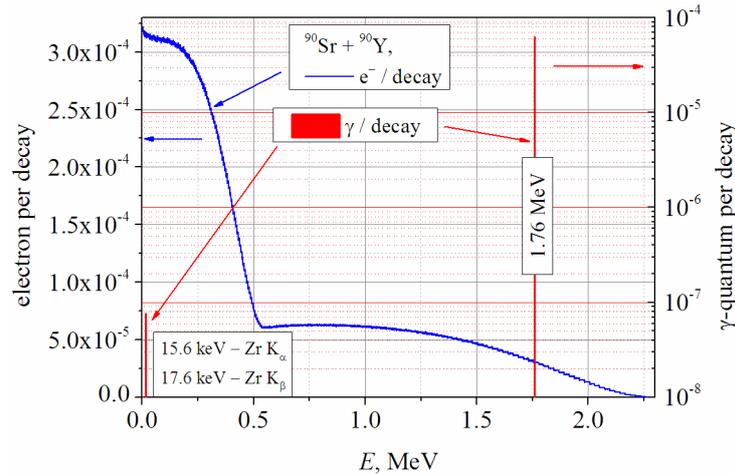


Fig. 1. Simulated energy spectrum of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source.

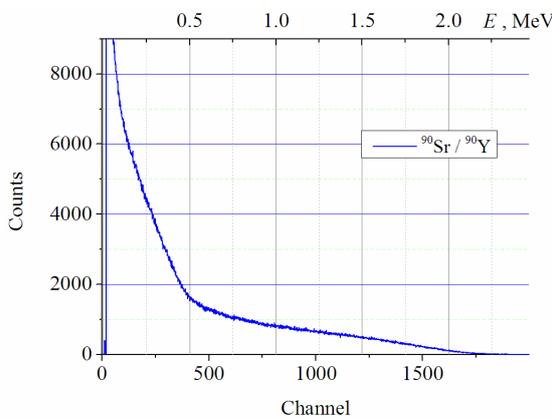


Fig. 2. ISO-135 source spectrum, measured with CdZnTe detector.

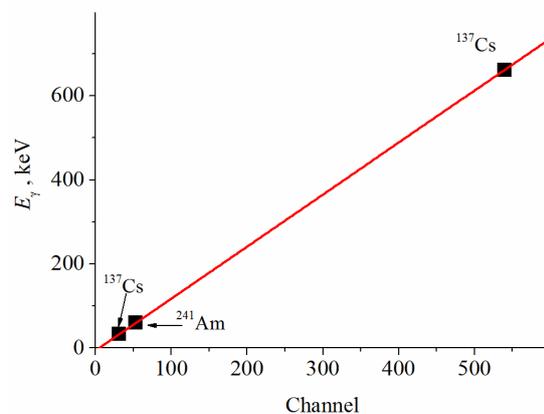


Fig. 3. Calibration dependence for determination of the ADC step size in terms of energy.

SIMULATION OF CdZnTe DETECTOR RESPONSE

For simulation of CdZnTe detector response to the radiation of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source we used model of a wide-gap radiation detector which was in detail described in our previous papers [8, 9]. For speeding-up the calculations we assumed that the thickness of the $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source equals zero. In each numerical experiment 4×10^7 decay chains of ^{90}Sr were modeled. Simulated and experimental response functions of a CdZnTe detector were compared in absence and in the presence of filters from aluminum and lead which slow down electrons.

As is evident from Fig. 4 and 5, the proposed model provides as a whole a good agreement between the simulated and experimental response functions of CdZnTe detector to $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ radiation source. Also satisfactory agreement of average pulse amplitude is observed (Fig. 6), which was calculated as $E_{mid} = \frac{\sum_i i \cdot N_i}{\sum_i N_i}$. Here i is the number of

ADC channel, N_i is the number of pulses in the channel. The only fitting parameters of the applied model were products of mobility μ and average life time τ of electrons and holes in CdZnTe detector. Direct experimental measurements of products $(\mu\tau)_{e,h}$ are impossible without disassembling and damaging the detector [10]. Response functions of the CdZnTe detector in Fig. 4, 5, 7 and 8 were obtained for values $(\mu\tau)_e = 2.2 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V}$, $(\mu\tau)_h = 1 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$. The fitting values of $(\mu\tau)_{e,h}$ correspond to the measured efficiency of charge collection, $\text{CCE} \approx 34\%$.

Fig. 4 displays the simulated and experimental response functions of CdZnTe detector without slowing-down filters. It is evident that in the experimental pulse distribution the region, where the electron spectrum is formed due to the disintegrations of ^{90}Sr and ^{90}Y , remains more distorted in comparison to the simulated spectrum. At the same time, in the presence of slowing-down filters the simulated and experimental spectra in this region agree much better (Fig. 5). The better agreement in Fig. 5 against Fig. 4 could be explained with the assumption that between the radiation source and detector an additional thin slowing-down layer is present, unaccounted in the simulation model. This assumption is corroborated by the fact that the experimental value of average pulse amplitude in the presence of slowing-down filters appeared constantly lesser in comparison with the simulation data (Fig. 6). Probably for electrons such additional slowing-down mechanism is created by the contact gold plate on the detector surface which is covered by a layer of an electrical insulating material. However, we did not manage to select the effective thickness of this layer, which would improve the agreement of simulated and experimental average pulse amplitudes.

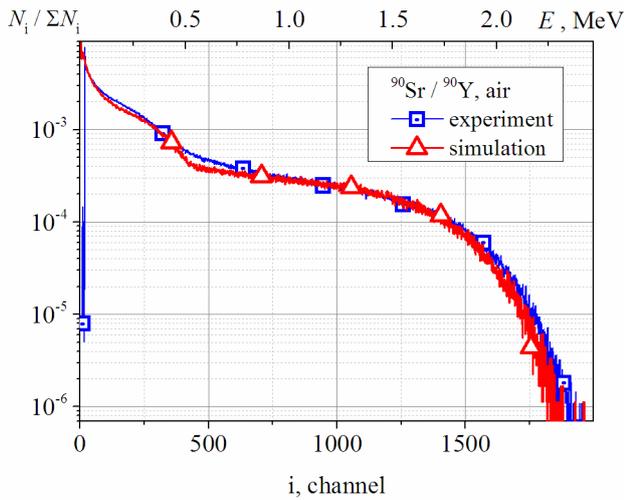


Fig. 4. ISO-135 source spectrum without any slowing-down filter.

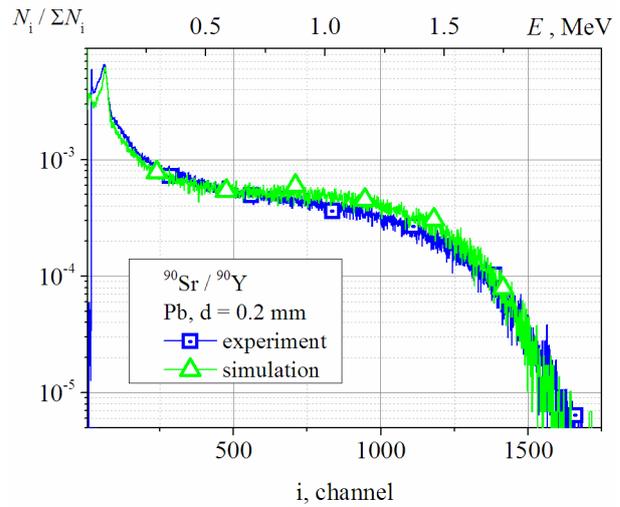


Fig. 5. ISO-135 source spectrum taken with lead filter.

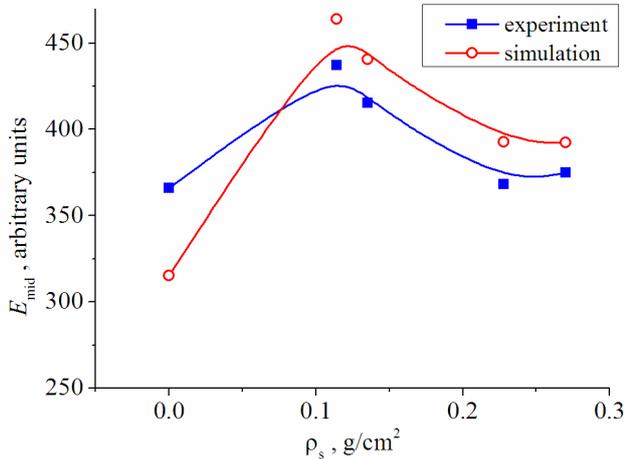


Fig. 6. Dependence of average pulse amplitude of CdZnTe detector on the surface density of a slowing-down filter.

Table 2 compares the modifications in experimental and simulated electron spectra due to the installation of the slowing-down filters from aluminum and lead between the source and detector. The energy flux, which is registered by CdZnTe detector, is determined by the expression $W_e = E_{ADC} \sum_i i \cdot N_i$, where E_{ADC} is the ADC step size in MeV. The relative change in the energy flux, recorded by CdZnTe detector in the presence of a filter, is determined as $W_{e\ filter} / W_{e\ air}$ ratio. For all filters the energy flux, calculated according to the applied model, appears permanently larger at 3–5 %.

The average amplitude of the spectrum measured without slowing-down filters, considerably exceeds the corresponding value for the simulated spectrum (Fig. 6). In the presence of filters the reversed situation is observed: the average amplitude of the simulated spectrum exceeds the value of E_{mid} for the experimental spectrum.

Table 2.

Characteristics of electron spectra of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ measured with CdZnTe detector

Filter	Thickness, mm	Relative energy flux $W_{e\ filter} / W_{e\ air}$		Relative average amplitude $E_{mid\ filter} / E_{mid\ air}$		Relative average amplitude $E_{mid} / E_{mid\ Al}$	
		experiment	simulation	experiment	simulation	experiment	simulation
1	2	3	4	5	6	7	8
No filter (air)	–	1.00	1.00	1.00	1.00	0.88	0.72
Al	0.5	0.53	0.57	1.14	1.40	1.00	1.00
Al	1	0.29	0.34	1.02	1.24	0.90	0.89
Pb	0.1	0.43	0.48	1.19	1.47	1.05	1.05
Pb	0.2	0.17	0.20	1.01	1.24	0.89	0.89

In Table 2 the changes in the pulse amplitude averaged over the spectrum were determined in columns 5 and 6 by the ratio $E_{mid\ filter} / E_{mid\ air}$. As a result, we have a more than 20 % disagreement between the simulated and experimental data. If to consider relative change of average amplitudes only in the presence of filters, the simulated and experimental values appears identical (Table 2, columns 7 and 8).

As is evident from Fig. 4 and 5, the most appreciable disagreement of the calculated and measured response functions of CdZnTe detector is observed at low energy. In this region of experimental spectra the pulses of low energy electrons are superimposed with noise pulses. In Fig. 7 and 8 the simulated and experimental response functions of CdZnTe

detector to the $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ radiation source are shown in the case when the lower discrimination level of a measuring channel E_{discr} is set for 180 keV (channel no. 150). The selected value of the lower discrimination level is somewhat higher than the lower limit of the registered energies range of the commercial scintillation beta-spectrometers. For example, for the AT1315 Gamma Beta Radiation Spectrometer the lower limit of the operating energy range is 150 keV [11].

The spectra obtained in the presence of slowing-down filters display no essential changes (Fig. 5 and 8). At the same time, in the absence of slowing-down filters the agreement of simulated CdZnTe detector response functions with experimental data in the low energy range (from 0.2 to 0.5 MeV) is considerably improved (Fig. 7).

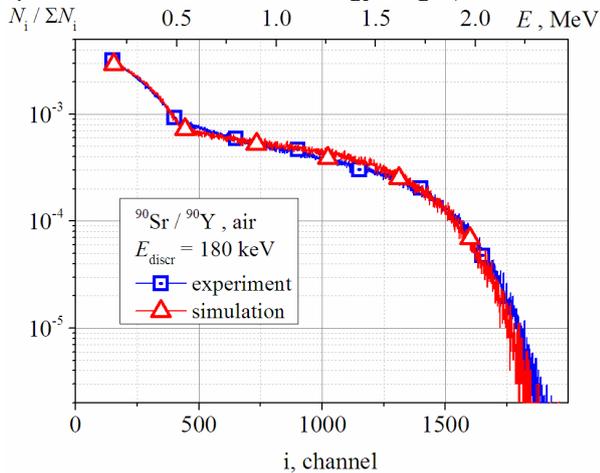


Fig. 7. ISO-135 source spectrum without any slowing-down filter.

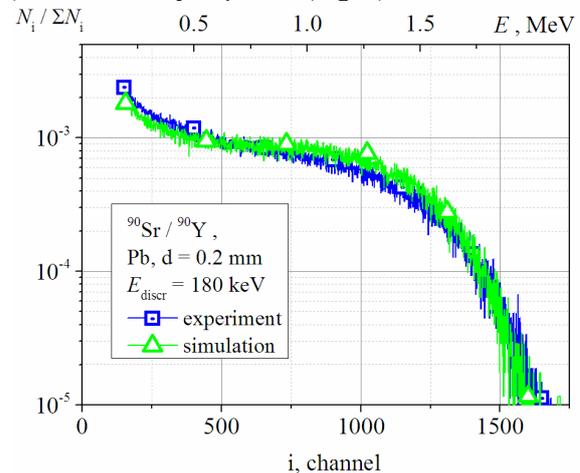


Fig. 8. ISO-135 source spectrum taken with lead filter.

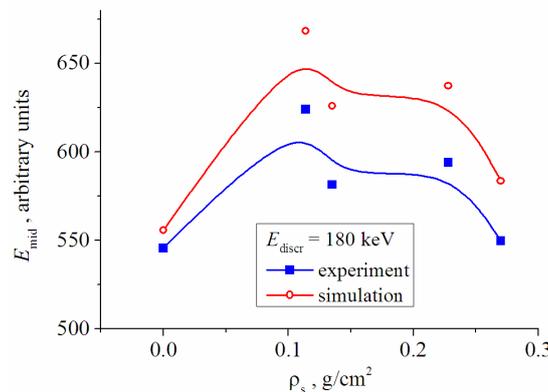


Fig. 9. Dependence of average pulse amplitude of CdZnTe detector on the surface density of the slowing-down filter.

Table 3 compares the characteristics of simulated and experimental spectra of electrons when the lower discrimination level is set for 180 keV. In this case the spread of the relative change in average pulse amplitudes for experimental and simulated spectra makes only 4 – 6% (Table 3, columns 5 and 6) against more than 20% discrepancy with zero discrimination level. If to compare only the spectra with filters the relative changes of the experimental and simulated average amplitudes (Table 3, columns 7 and 8) again remain almost identical. The relative energy flux in the presence of slowing-down filters changes insignificantly compared to the previously considered case when the lower discrimination level equaled zero.

In the cases when the measuring the electron fluxes of low energy (below 100 keV) with CdZnTe (CdTe) detectors is needed, one has to decrease considerably the noise level of the measuring equipment (down to 10 keV) in order to avoid the essential distortion of the obtained experimental data.

The comparison of experimental and computed response functions at different discrimination levels shows, that the noise of the preliminary amplifier is a major factor in distortion of measurement data. It is necessary also to take into account that the temperature dependence of the noise can impede the correct comparison of measurements performed under different conditions. However, the simulation has shown that the increase in the lower discrimination threshold largely eliminates divergences between measurement and simulation data. A similar effect is achieved at the application of thin metal filters (in this case it is possible also to abandon the beryllium window in the detecting unit that simplifies its construction). In both cases the investigated model can be used for calibration of the response of CdZnTe detecting units to the radiation from different beta-sources.

Table 3.

Characteristics of electron spectra of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ source at 180 keV discrimination level

Filter	Thickness , mm	Relative energy flux $W_{e \text{ filter}}/W_{e \text{ air}}$		Relative average amplitude $E_{\text{mid filter}}/E_{\text{mid air}}$		Relative average amplitude $E_{\text{mid}}/E_{\text{mid Al}}$	
		experiment	simulation	experiment	simulation	experiment	simulation
1	2	3	4	5	6	7	8
No filter (air)	–	1.00	1.00	1.00	1.00	0.94	0.89
Al	0.5	0.54	0.59	1.07	1.13	1.00	1.00
Al	1	0.29	0.35	1.01	1.05	0.95	0.93
Pb	0.1	0.44	0.50	1.14	1.20	1.07	1.07
Pb	0.2	0.17	0.20	1.09	1.15	1.02	1.02

CONCLUSIONS

The electron energy spectra of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ radiation source were measured with a planar CdZnTe detector. The model of the wide gap semiconductor gamma-ray detector, developed earlier [8, 9], was used for the simulation of CdZnTe detector response functions by Monte-Carlo method. The simulated response functions of a CdZnTe detector agree well with the experimentally measured response functions after the introduction in the detector model of only two fitting parameters: products of mobility and average lifetime for electrons and holes. Other parameters of the model (bias voltage, equivalent noise charge, shaping time, detector unit geometry) correspond to the actual characteristics of the measuring channel. This agreement allows using instead of the measured response function the simulated one, obtained in the proposed detector model, for example, in the problem of extraction of beta radiation spectrum at measurements in the mixed beta and gamma fields (i.e., at in situ determination of ^{137}Cs and ^{90}Sr sources activity).

In research of radiation protection ability of a material the best agreement of experimental and simulated electron energy spectra is reached at rather high discrimination level (more than 100 keV). The noise of the preliminary amplifier is a major factor in distortion of measurement data. The simulation has shown that the increase in the lower discrimination threshold largely eliminates divergences between measurement and simulation data. A similar effect is achieved at the application of thin metal filters. In both cases the investigated model can be used for calibration of the response of CdZnTe detecting units to the radiation from different beta-sources. When exact measurement of beta spectra for energy less than 100 keV is needed, it is necessary to use a measuring channel with noise level of 10 keV and below.

REFERENCES

1. Qiushi Zhang, Congzhe Zhang, Yanye Lu et al. Progress in the development of CdZnTe unipolar detectors for different anode geometries and data corrections // *Sensors*. – 2013. – Vol. 13. - Issue 2. – P. 2447-2474.
2. Maslyanchuk, O., Aoki, T., Sklyarchuk, V. et al. High-efficiency cadmium telluride detectors of X- and γ -radiation // *Ukr. J. Phys.* – 2014. – Vol. 59, No. 1. – P. 17-33.
3. Panitra M., Uritani A., Kawarabayashi J. et al. Pulse shape analysis on mixed beta particle and gamma-ray source measured by CdZnTe semiconductor detector by means of digital-analog hybrid signal processing method // *Journal of Nuclear Science and Technology*. – 2001. – Vol. 38, No. 5. – P. 306-311.
4. Dzhur E.A., Sanin A.F., Bozhko S.A., et al. Kompozicionnyj material dlja zashchity radioelektronnoj apparatury kosmicheskikh apparatov ot ioniziruiushchego izlucheniia // *Vestnik Sibirskogo gosudarstvennogo aerokosmicheskogo universiteta*. – 2013. – special issue 6(52). – S.126–131.
5. Belous V.A., Borisenko V.N., Voevodin V.N. et al. Radiation-absorbing properties of Al-Pb laminated composites // *Physico-Chemical Mechanics of Materials*. – 2014. – No. 1 – P. 92–95.
6. Allison J., Amako K., Apostolakis J. et al. Geant4 developments and applications. // *IEEE Transactions on Nuclear Science*. – 2006. – Vol. 53. – P. 270-278
7. LBNL Isotopes Project – LUNDS Universitet (<http://ie.lbl.gov/toi/index.asp>)
8. Zakharchenko A.A., Verevkin A.A., Kutny V.E. et al. Modelirovanie funkcii otklika CdZnTe detektorov dlja dozimetrii gamma-izlucheniia // *The Journal of Kharkiv National University, physical series "Nuclei, Particles, Fields"*. – 2008. – No. 832. - Issue 4(40). – P. 71-76.
9. Zakharchenko A., Skrypyuk A., Khazhmuradov M. et al. The energy dependence of the sensitivity for planar CdZnTe gamma-ray detectors // *Proc. SPIE*. – 2013. – Vol. 8852. – P. 88521B.
10. Zakharchenko A.A., Kutny V.E., Nakonechny D.V. et al. Metody opredeleniia parametrov perenosa zariada v CdTe (CdZnTe) detektorah gamma-izlucheniia // *The Journal of Kharkiv National University, physical series "Nuclei, Particles, Fields"*. – 2007. – No.784. - Issue 4 (36). – P. 85–92.
11. AT1315 Gamma Beta Radiation Spectrometer (<http://www.atomtex.com/en/products/radiation-spectrometers/at1315-gamma-beta-radiation-spectrometer>)

PACS: 29.27.Fh

DETERMINATION OF ELECTRON BEAM PARAMETERS ON RADIATION-TECHNOLOGICAL FACILITY FOR SIMULATION OF RADIATION PROCESSING

V.T. Lazurik^{*}, V.M. Lazurik^{*}, G.F. Popov^{*}, Z. Zimek^{}**

^{}V.N. Karazin Kharkiv National University*

4 Svobody Sq., 61022, Kharkiv, Ukraine

*^{**}Institute of Nuclear Chemistry and Technology*

ul. Dorodna 16, 03-195, Warsaw, Poland

E-mail: popov_gen@yahoo.com

Received September 3, 2014

It was performed the practical approval of special computational method PFSEM for reconstruction of EB characteristics on the base of two-parametric fitting of semi-empirical model for the depth-dose curves (DDC) of electrons beam. The measurement of DDC of electrons into standard dosimetric wedge were performed in the process of radiation sterilization of medical devices on the radiation facility with EB accelerator into INCT, Warsaw, Poland. It was shown that satisfactory agreement between the measurement results and simulation of the DDC of electrons beam with using PFSEM method is observed.

KEY WORDS: electron beam energy, dosimetric wedge, semi-empirical model, computational method PFSEM, Monte-Carlo method

ОТРИМАННЯ ПАРАМЕТРІВ ПУЧКУ ЕЛЕКТРОНІВ НА РАДІАЦІЙНО-ТЕХНОЛОГІЧНИХ УСТАНОВКАХ ДЛЯ МОДЕЛЮВАННЯ ПРОЦЕСІВ ОПРОМІНЕННЯ

В.Т. Лазурик^{*}, В.М. Лазурик^{*}, Г.Ф. Попов^{*}, З. Зімець^{}**

^{}Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна*

пл. Свободи 4, 61022, Харків, Україна

*^{**}Інститут Ядерної Хімії та Технологій*

03195, Варшава, Польща, вул. Дородна 16

Проведена апробація спеціального розрахункового методу PFSEM для відновлення характеристик пучку електронів (ПЕ) на основі двопараметричної підгонки напівемпіричної моделі для глибинної залежності дози (ГЗД) ПЕ. Вимірювання дози електронів в стандартному дозиметричному клині проводилось в процесі радіаційної стерилізації медичних виробів на радіаційному обладнанні із прискорювачем електронів в Інституті Ядерної Хімії та Технологій, Варшава, Польща. Спостерігалось задовільне узгодження між результатами вимірювання та моделювання ГЗД ПЕ із використанням PFSEM методу.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: енергія пучку електронів, дозиметричний клин, напівемпірична модель, розрахунковий метод PFSEM, метод Монте-Карло

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ ПУЧКА ЭЛЕКТРОНОВ НА РАДИАЦИОННО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ УСТАНОВКАХ ДЛЯ МОДЕЛИРОВАНИЯ ПРОЦЕССОВ ОБЛУЧЕНИЯ

В.Т. Лазурик^{*}, В.М. Лазурик^{*}, Г.Ф. Попов^{*}, З. Зимек^{}**

^{}Харьковский Национальный Университет им В.Н. Каразина*

пл. Свободы 4, 61022, Харьков, Украина

*^{**}Институт Ядерной Химии и Технологий*

03195, Варшава, Польша, ул. Дородна 16

Проведена апробація спеціального вичислювального методу PFSEM для відновлення характеристик пучка електронів (ПЕ) на основі двопараметричної підгонки напівемпіричної моделі для глибинної залежності дози (ГЗД) ПЕ. Вимірювання дози електронів в стандартному дозиметричному клині проводилось в процесі радіаційної стерилізації медичних виробів на радіаційному обладнанні із прискорювачем електронів в Інституті Ядерної Хімії та Технологій, Варшава, Польща. Спостерігалось задовільне узгодження між результатами вимірювання та моделювання ГЗД ПЕ із використанням PFSEM методу.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: энергия пучка электронов, дозиметрический клин, полуэмпирическая модель, вычислительный метод PFSEM, метод Монте-Карло

The process of radiation sterilization of medical devices refers to “critical technologies”. These technologies are conducting under continuous dosimetric control of all basic parameters of radiation facility and process irradiation. Control parameters on the EB accelerators are the following: energy and EB current, scanner characteristics, velocity of conveyer line, and value of EB absorbed dose on the surface of irradiated target – so called as sterilization dose. EB energy in time irradiation is controlled with dosimetric wedge or stack that together with irradiated products overpass all cycle irradiation. Sterilization dose control is realized with dosimetric calorimeter. The measurement of EB absorbed dose distribution in an irradiated product in detail is performed with dosimetric films.

Determination of the electron beam (EB) characteristics on the base of measurement results was performed with use of standard [1] and special [2-7] computation methods. Computer simulation of irradiation process allows profitably to perform dose mapping for EB and gamma irradiation, determination of location for maximal and minimal values of

absorbed doses (D_{\min} and D_{\max}) into containers with irradiated products, calculates productivity of irradiated product [8]. In this case the volume of routine dosimetric measurements essentially decreased.

Quality factor of the computation methods of EB characteristics determination was based on calculation of the mean square deviation between measurement results and Monte Carlo (MC) simulation results for the DDC into standard dosimetric wedge. Determination of parameters that are necessary for correct computer simulation the irradiation process of product by EB, X-rays and gamma rays on radiation facility are actual tasks.

Available standard computational methods [1] do not allows correctly reconstruct spectral and angular EB characteristics. As a result, there are no possibility correctly simulate the absorbed depth-dose distribution of electrons into standard dosimetric devices such as wedge and stack.

Goal of the present work is investigation of possibility determination the electron beam characteristics on the base of measurement results of the absorbed depth-dose distribution of electrons into standard dosimetric wedge or stack. These results should be obtained with necessary accuracy for correct simulation the processes irradiation on the real EB radiation facility into practical activity of the radiation-technological centers.

PROCEDURE AND MEASUREMENT RESULTS

Irradiation of 2 standard Al wedges with PVC, CTA and B3 dosimetric films was performed on the electron linear accelerator Elektronika 10/10 at INCT, Warsaw with electron beam energy of 10 MeV [9]. Two Al wedges with PVC, CTA and B3 dosimetric films in form of strips were located in one Al box irradiated with a scanned electron beam of energy 10 MeV, pulse duration 5.6 μ s, pulse frequency 370 Hz, average beam current 1.04 mA, scan width 58 cm, conveyer speed was in the range 1-0.1 m/min, scan frequency 5 Hz. Electron beam energy was measured with two Al wedges. Control of dose delivered to the wedges in time irradiation was performed with RISO polystyrene calorimeter [10].

The absorbed dose of irradiated materials was delivered in the range of 10-50 kGy. The maximum of combined uncertainty related to dose determination in the Al wedges with PVC, CTA and B3 dosimetric films for values of doses greater than 5 kGy did not exceed 8% ($k=2$). The uncertainty is a combination of the uncertainties related with dosimetric film calibration, in reproducibility of the series of experiments, the dose given at electron accelerator, spectrophotometer reader variability. The uncertainty of the length value measurement of dosimetric strips is 0.1 cm.

PVC, CTA and B3 dosimetric films were calibrated against alanine dosimeter which is traceable to National Physical Laboratory, Teddington, Middlesex, UK [11].

Characteristics of dosimetric films are the following: CTA- Cellulose Triacetate film: density 1.32 g/cm^3 , thickness 0.125mm, width 8mm; PVC - Polyvinylchloride film: density 1.3 g/cm^3 , thickness 0.26mm, width 8mm or 16 mm; B3 - Polyvinylbutyral film: density 1.12 g/cm^3 , thickness 0.02mm, width 10-15mm.

The SEMCO S/E_c spectrophotometer in automatic mode was used for reading the optical density at a wavelength of 394 nm from PVC strip films with a step of 0.1 cm along the film length. The FDR001 spectrophotometer in automatic mode was used for reading the optical density for CTA strip films using a wavelength 280 nm. The RISO flat-bed scanner was used for processing B3 dosimetric films.

Comparison of experimental and simulation results will be illustrated on the CTA dosimetric films located into standard Al wedges and irradiated with scanned EBs. The CTA films into wedges were irradiated with electrons in two regimes: at dose of sterilization – 35 kGy (regime 1), and 28 kGy (regime 2).

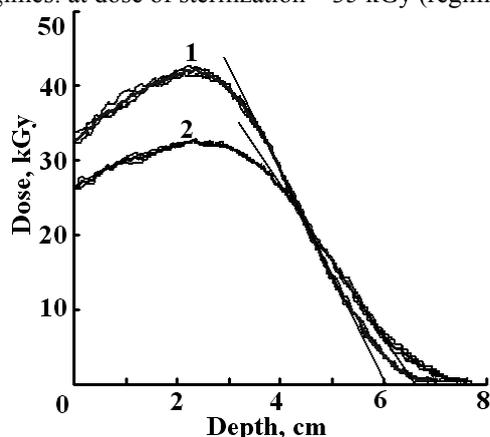


Fig.1. The depth-dose curves of electrons in CTA dosimetric films located in standard dosimetric wedges. Curves 1 – irradiation regime 1, curves 2 – irradiation regime 2.

Preliminary processing of measurement results was performed. Initial points of the absorbed depth-dose curves in CTA dosimetric films located in dosimetric wedges were determined. The systematic inaccuracies for values of absorbed dose were eliminated. Results of preliminary processing of experiments data for the depth-dose curves of EBs into CTA dosimetric films are presented in Fig. 1. Curves 1 – corresponds to irradiation regime 1, curves 2 – irradiation regime 2. The tangent curves were used for determination the practical range R_p of electrons and the most probably energy - E_p for electrons of beam.

As it is seen from the Fig.1 the changes of working regimes irradiation into electrons beam accelerator can be lead to essential changes of electrons beam characteristics and respectively the changes of the depth-dose curves for electrons in the dosimetric wedges.

Investigation of results repeatability for the depth-dose curves of electrons in CTA, PVC and B3 dosimetric films located into standard Al wedges were performed in set of experimental measurements. The measurement results repeatability was estimated on the base of the mean square deviation for each pair of measurement results and relatively averaged data of the absorbed depth-dose distribution curves into measurement series.

As result of estimations - repeatability of measurement results for absorbed dose EB is good. For example, the deviation for average value of absorbed dose for CTA dosimetric films did not exceed 1%. Relatively of repeatability for the absorbed dose measurements in separate spatial points – the mean square deviation did not exceed 2%.

STANDARD METHODS FOR DETERMINATION OF ELECTRON BEAM CHARACTERISTICS

The possibilities of computational methods which are realized of standard methods for determination of electron beam characteristics on the base of the depth-dose curves measurements into standard dosimetric wedge were investigated.

The various computational methods for determination of standard EB characteristics such as most probably energy - E_p and average energy - E_{av} for electrons of beam were analyzed.

First of all, the methods difference related with possibility to use into Standard [1] two various functions for approximation of dependence $E_p(R_p)$ for most probably energy of electron beam as function of the practical range R_p of electron:

- linear function $E_p = 5.09 \cdot R_p + 0.2.$ (1)

- square-law function $E_p = 0.423 + 4.69 \cdot R_p + 0.0523 R_p^2.$ (2)

Furthermore, the method for determination of value R_p demands processing results of measurements with using approximation of discrete data for which the function type is not determined into standard. Therefore, both of linear function [1,7] and fourth polynomial [2,3] are used in practice.

In calculations, based on set of measurement results, it was shown that at determination of value R_p , calculation results with use linear interpolation [1, 7] - and fourth polynomial [2] are putted to values difference that exceed 2%. Some calculations results are presented in the Table 1. Else more greater differences appears off use above empirical dependences $E_p(R_p)$ on the base of linear (1) or square-law approximations (2) and, for set of measurement results, they can exceed 5%.

In accordance with R_p , value the most probably energy - E_p was calculated with use linear dependence (1) (column E_p , (1)) and square-law dependence (2) (column E_p , (2)). Most probably energy - E_p and average energy - E_{av} for electrons are presented in Table 1 for comparison.

Table 1.

Electron beam parameters calculated with various computational methods on the base experimental data A_v , that were obtained by averaging results in measurement series for irradiation regime 1

Computational methods	R_p , cm.	$E_p(1)$, MeV	$E_p(2)$, MeV	E_{av} , MeV
A_v , [2]	1.70	8.54	8.86	7.88
A_v , [1]	1.66	8.35	8.67	-

Data of experimental results A_v (separated points), received by averaging of a set of measurements in CTA dosimetric films for first irradiation regime and simulation results of the depth-dose curves of EB into CTA dosimetric films on the base of semi-empirical model [6] with using of parameters EB from Table 1 are presented in Fig. 2.

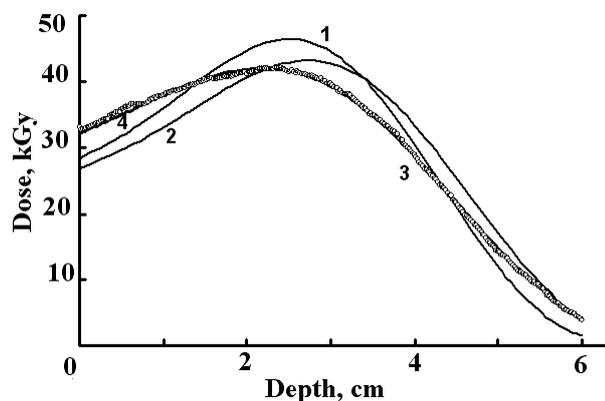


Fig.2. Comparison of experimental results- separate points - curve 3, with simulation results for the depth-dose curves of EB in CTA dosimetric films located into dosimetric wedge on the base of semi-empirical model - continuous curve 4.

Data up to thickness, where observe maximum of dose (D_{max}) - utilized models for determination of EB parameters are do not satisfactory. Indeed, relation for dose value on the target surface $D(0)$ to maximum dose value into irradiated target - D_{max} for semi-empirical models approximately equal 0.62, that differs from experimental data - 0.77.

Accordingly, standard computation methods for processing of measurement results obtained into dosimetric wedge or stack do not allow to receive EB parameters, that will be sufficient for correct computer simulation the

The depth-dose curves for mono-energetic electron beams of various energies for comparison are presented in Fig. 2:

- E_{av} – average energy, calculated with use standardized procedure (curve -1);
- E_p – most probably energy, calculated with use standardized procedure on the base of square-law dependence from R_p (curve -2).

These curves are normalized in a such way, that absorbed dose of electrons into target is fixed (do not depend from energy of electrons) and corresponds to measurement results.

As it is seen on Fig.2. the back decline of the absorbed depth-dose distribution curves can be described using standard parameters of EB. But the results will be received with big value of uncertainty. Relatively the depth-dose curves in the region of target from entrance surface

absorbed depth-dose distribution into standard dosimetric wedge and stack.

It seems that difference between measurement and simulation results testify about essential role of angular distribution of electrons in the process of dose field formation into irradiated target. Furthermore, it is necessary to take into consideration the electron beam spectrum. But today, there are absent the methods and facilities for control of spectral and angle characteristics of EB in the process of target irradiation.

DETERMINATION OF ELECTRON BEAM CHARACTERISTICS ON THE BASE OF TWO-PARAMETRIC SEMI-EMPIRICAL MODEL

For control of spectral and angle characteristics of EB it is proposed to use two-parametric semi-empirical model for EB. In this model it is supposed that spectral and angular characteristics of EB falling on the target surface coincides to characteristics of mono-energy and mono-directional EB, which cross some material layer.

Model parameters are the following: electron energy (E_0) of mono-energy EB and thickness (X_0) of material layer which is located before target. Model parameters can be determined by fitting of semi-empirical model parameters for the depth-dose dependence of mono-energy EB into semi- infinite area to experimental results obtained with dosimetric wedge. Herewith, fitting parameters of semi-empirical model are the following: electron beam energy (E_0) and displacement of initial point (dX) on depth-dose curve.

Into computational scheme, the method of coordinate descent was used for determination with prescribed accuracy the value of EB energy and depth displacement of the initial point on the depth-dose curve. These characteristics ensure of minimum square deviation between data calculated into model and normalized measurement data.

Thereby, accounting of spectral and angular characteristics of EB falling on the target surface is defined by selection of model EB energy and thickness of material layer located before target which allows correctly simulate the depth-dose curve into irradiated target.

Some results calculations of EB characteristics with standard methods and with use of two-parametric model are presented in the Table 2. It was assumed that model layer was made by aluminum also as dosimetric wedge. It should be note, that for all set of experimental data, the energy values simulated with various methods are correlated, but also can be greatly differs by values (Table 2).

Table 2.

Results calculations of EB characteristics with standard methods and with use of two-parametric model

Regimes irradiation	R_p , cm	$E_p(2)$, MeV	E_0 , MeV	X_0 , cm
Regime 1	1.72	8.63	9.96	0.31
Regime 2	1.89	9.43	11.39	0.42
Regime 1A _v	1.70	8.54	10.01	0.32

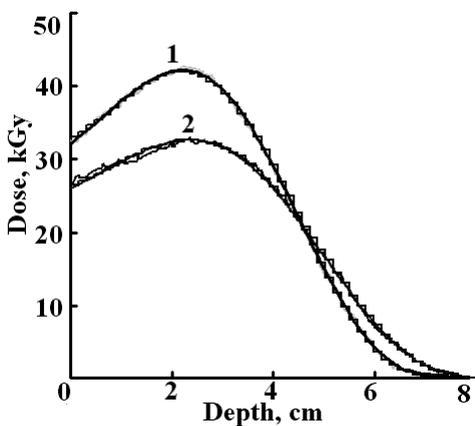


Fig. 3. The depth-dose curves of electrons in CTA dosimetric films. Curves 1 – irradiation regime 1, curves 2 – irradiation regime 2.

Practical approval results of parametric fitting of semi-empirical model (PFSEM) method for determination of electron beam characteristics on the base of two parametric model are presented in Fig.3. Electron beams parameters for which represented results simulation are presented in the Table 2. It should be note that row of Table 2 (regime 1A_v) include of EB parameters for which results simulation are shown in Fig.2.

Package of Curves 1 include the following information: experimental curve which was measured in regime 1; smooth curve corresponds to results simulation with two-parametric semi-empirical model; histogram curve – result simulation with Monte Carlo method using RT-Office software [8]. Package of Curves 2 include the same information only related with irradiation regime 2.

As it is seen from Fig. 3 and from comparison of averaging measurement results with semi-empirical model results (curve 4) on the Fig.2. – agreement between measurement and simulation results is good. Difference of model approximation from measurement results for all set of experimental data is less 1%.

INVESTIGATION RESULTS

- The measurement results of the depth-dose curves of electrons into standard dosimetric wedge were performed. Changes of working regimes irradiation into electrons beam accelerator can be lead to essential changes of electrons beam characteristics and respectively the depth-dose curves of electrons in dosimetric wedge.

- Repeatability estimation of measurement method the depth-dose curves into dosimetric wedge was performed. The measurement results repeatability was estimated on the base of the mean square deviation for each pair of measurement results and relatively an averaging curve. Estimates for these two methods were agreed and measurement errors were less than 2% of average value for absorbed dose in an irradiation area.

• Investigations of possibility for utilization of electron beam characteristics, that were obtained by standard dosimetric wedge, for computer simulation of process irradiation were performed. It was shown that these characteristics are insufficient for correct simulation of the depth-dose curves into dosimetric wedge and stack. The reasons of essential difference between results simulation and measurement were established.

• The practical approbation of two-parametric semi-empirical model for determination of EB characteristics on the base of measurement results, obtained with standard dosimetric wedge, was performed. The errors of PFSEM method were estimated on the base of the mean square deviation between measurement and simulation results. Approximation error did not exceed 1% from average value for absorbed dose in an irradiation zone. It means that irradiation regimes, that corresponds to performed experiments, can be adequately simulated on the base of obtained parameters EB.

CONCLUSIONS

It was proposed and tested the computational methods for processing of measurement results obtained with dosimetric wedge for determination of electron beam parameters on the base of which it is possible to realize of correct computer simulation of the depth-dose curves of electrons in wide diapason of target depth.

It should be interesting to perform the verification and validation methods into wide diapason of EB energy and on the various types of EB accelerators.

REFERENCES

1. ISO/ASTM Standard 51649, Practice for dosimetry in an e-beam facility for radiation processing at energies between 300 keV and 25 MeV / Annual Book of ASTM Standards. – Vol. 12.02 (2005).
2. Lisanti T.F. Calculating electron range values mathematically // Radiation Physics and Chemistry. – 2004. – Vol. 71. – P. 581 – 584.
3. Cleland M.R., Lisanti T.F., Galloway R.A. Comparisons of Monte Carlo and ICRU electron energy vs. range equations // Radiation Physics and Chemistry. – 2004. – Vol. 71. – P. 585 – 589.
4. Lazurik V.T., Pochynok A.V. Dosimetry of electrons on the base of computer modeling the depth-dose distribution of irradiation // Journal of Kharkiv University. Mathematical modeling. Information technologies series. – 2010. – No.925. – P.114 – 122.
5. Pochynok A.V., Lazurik V.T., Sarukhanyan G.E. The parametric method of the determination of electron energy on the data obtained by the method of a dosimetric wedge // Bulletin Kherson National Technical University. – 2012. – Vol. 2(45). – P.298-302.
6. Lazurik V.M., Tabata T., Lazurik V.T. A Database for Electron-Material Interactions // Radiation Physics and Chemistry. – 2001. – Vol.60. – P. 161-162.
7. GEX Corporation. The Dosimetry company. <http://gexcorporation.com/>
8. Lazurik V.T., Lazurik V.M., Popov G., Rogov Yu., Zimek Z. Information System and Software for Quality Control of Radiation Processing // IAEA: Collaborating Center for Radiation Processing and Industrial Dosimetry, Warsaw: Poland. – 2011. – 220 p.
9. Bigolas J., Kulinski S., Maciszewski W., Pachan M., Plawski E, Zimek Z. Current approach to design of high-power electron accelerators to match actual requirements of radiation technology in Poland // Radiation Physics and Chemistry. – 2001. – Vol. 60. – P.161-162.
10. Miller A. Polystyrene calorimeter for electron beam dose measurements // Radiation Physics and Chemistry. – 1993. – Vol.46. – P. 1243–1246.
11. National Physical Laboratory, Teddington, Middlesex, UK [www.npl.co.uk]

PACS: 81.10.Fq, 88.40.jj, 78.40.Fy, 81.40.-z, 85.40.Ry, 72.10.Fk

SILICON MONOCRYSTALS FOR ALTERNATIVE ENERGY

N.A. Azarenkov¹, V.E. Semenenko¹, A.I. Ovcharenko¹

¹ V. N. Karazin Kharkov National University

4 Svobody Sq., Kharkov, 61022, Ukraine

E-mail: ovcharenko@khnu.org

Received September 1, 2014

This paper considers features of the formation and microstructure revealing of profound n- and p-type silicon monocrystals. Influence of hole and electron conductivity in semiconductors on the pattern of anodic etching is determined. Correlation among silicon microstructure, dislocation density and minority carriers' lifetime has been studied. Influence of impurity diffusion from the surface into the space of the crystal on electrical properties' changes of the semiconductor is shown.

KEY WORDS: monocrystal, semiconductor, solar cell, dislocation, oriented crystallization, electron conductivity

МОНОКРИСТАЛИ КРЕМНІЮ В НЕТРАДИЦІЙНІЙ ЕНЕРГЕТИЦІ

М.О. Азаренков¹, В.Є. Семеновко¹, А.І. Овчаренко¹

¹ Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна

Майдан Свободи 4, Харків 61022, Україна

Розглянуто особливості утворення та виявлення мікроструктури досконалих монокристалів кремнію n- і p-типу. Визначено вплив діркової та електронної провідності напівпровідників на характер анодного травлення. Встановлено взаємозв'язок між мікроструктурою густини дислокацій і часом життя нерівноважних носіїв струму. Показано вплив дифузії домішок с поверхні в об'єм кристала на зміну електричних властивостей напівпровідника.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: монокристал, напівпровідник, сонячний модуль, дислокації, спрямована кристалізація, електронна провідність

МОНОКРИСТАЛЛЫ КРЕМНИЯ В НЕТРАДИЦИОННОЙ ЭНЕРГЕТИКЕ

Н.А. Азаренков¹, В.Е. Семеновко¹, А.И. Овчаренко¹

¹ Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина

Площадь Свободы 4, Харьков 61022, Украина

Рассмотрены особенности образования и выявления микроструктуры совершенных монокристаллов кремния n- и p-типа. Определено влияние дырочной и электронной проводимости полупроводников на характер анодного травления. Установлена взаимосвязь между микроструктурой, плотностью дислокаций и временем жизни неравновесных носителей тока. Показано влияние диффузии примесей с поверхности в объем кристалла на изменение электрических свойств полупроводника.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: монокристалл, полупроводник, солнечный модуль, дислокации, направленная кристаллизация, электронная проводимость

Modern development of scientific and technical progress conditions the necessity of creating new materials for nuclear and renewable energy search and development. The problem of economical use of natural and development of alternative energy sources becomes more acute. Among various non-traditional methods of energy production, conversion of solar radiation into electricity using semiconductor materials is the most promising one. It is a serious alternative to traditional fuel, nuclear and other forms of energy. In the vast majority of papers degradation of solar energy materials properties is being indicated [1-3]. However, structural analysis, analysis of the impact of heat treatment and radiation on the thermal stability, efficiency of solar cells, etc. is missing. The use of semiconductor materials in various fields of alternative energy conditions the need of their production in monocrystalline form with a near perfect structure [4-8].

Solar cell efficiency is defined by semiconductor materials physical-mechanical properties and phase-structural transformations that are present in them. The problem of a crystalline silicon solar cell fabrication, creation of a material based on crystalline silicon by using alloying and heat treatment techniques to achieve the maximum power output of a solar module is actual. The principal material for solar cells manufacturing is a nondirect gap semiconductor – silicon (amorphous, polycrystalline and monocrystalline). Semiconductor material that is the best for high-efficient solar cells production must be selected with the condition of obtaining the maximum output power, not the maximum short-circuit current or open-circuit voltage individually [9]. It is known that the optimal material for converting radiation of the solar spectrum into electricity are semiconductors (Si, GaAs, InP, CdTe, Ge, GaInP) with a band gap (E_g) ~1.3-1.5 eV. Light quanta with energies less than the bandgap are not absorbed by the semiconductor and are not involved in the photovoltaic process. Silicon band gap depends on temperature T the following way: $E_g \approx 1.21 - 3.6 \cdot 10^{-4} \cdot T$; while gallium arsenide has the value of E_g close to optimal. In theory, the maximum efficiency of solar cells based on it is 31% (Shockley-Queisser limit). It should be noted, however, that GaAs solar cells, lose their photoelectric properties if influenced by radiation. In space radiation, silicon solar cells have a clear advantage over other semiconductor materials [10,11]. This explains its extensive use for photoelectric converters production (Fig. 1). Apparently, change of the band

gap E_g under the influence of doping makes silicon solar cells work. The use of achievements of nanotechnology helps improving the characteristics of silicon solar cells [12]. Devices based on thin films (second generation of solar cells) and high-efficient and low-cost devices (third generation), which increase the energy extraction efficiency, are of an unquestionable interest [7]. It is worth mentioning that pure silicon is very rarely used in solar modules. Efficiency of solar cells based on amorphous poly- and monocrystalline silicon is 15, 17 and $>25\%$ respectively. Grain boundaries in multicrystalline silicon (mc-Si) create additional defect levels in the semiconductors' band gap, being the local centers of a high recombination rate, reducing the lifetime of minority current carriers. In addition, grain boundaries reduce the efficiency by preventing current flow through the system and creating a shunt path for the current flow through the p-n junction [13,14].

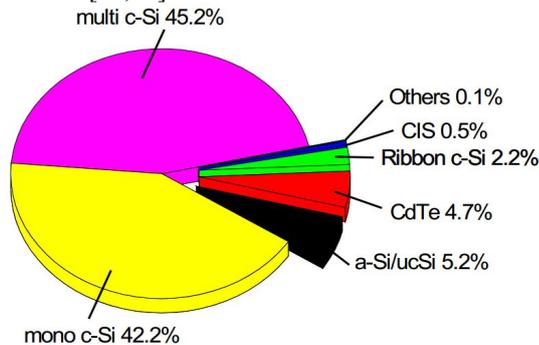


Fig. 1. Semiconductor materials used for solar modules and their portion of the total usage.

It should be noted that there is no unambiguous data considering the acceptor (boron) and donor (phosphorus) impurities solubility in silicon in the literature, which is necessary for the analysis of the impact of structural-phase transitions on the work of solar modules. It is supposed that the stability of a solar cell work, and thus their controlled structural-phase condition offsets the cost of their production substantially. Along with the purity of solar silicon (SOG-Si, solar grade, 99.999%), in order to eliminate the degradation of solar cell properties utter doped monocrystals with controlled structure and properties are needed.

The object of this work is to study the influence of impurities, linear and point defects generated during the controlled liquid-solid phase transition on the structure and properties of monocrystalline silicon.

MATERIALS AND EXPERIMENT

As a source material polycrystalline silicon was used. Its impurity composition was: B – 0.3 ppm ($1.16 \cdot 10^{-5}$ wt.%), Al – 0.1 ($9.6 \cdot 10^{-8}$), P – 0.2 ($2.2 \cdot 10^{-5}$), C – 3 ($1.29 \cdot 10^{-6}$), Fe – 0.03 ($5.98 \cdot 10^{-8}$), Ni – 0.1 ($2.1 \cdot 10^{-7}$), Zn – 0.1 ($2.34 \cdot 10^{-7}$), O – 10 ($5.71 \cdot 10^{-6}$), Cr – 0.01 ($1.86 \cdot 10^{-8}$). As a donor impurity boron was used, acceptor – phosphorus, concentration of which was 2.6 ppm (10^{-4} wt.%) and 1.4 ppm ($1.5 \cdot 10^{-4}$ wt.%) respectively. They form substitutional and interstitial solution, as their atoms have valence electrons on s- and p-orbits [15].

Silicon n- and p- type monocrystals with resistivity between about 0.001 and 200 Ohm·cm were obtained using directional crystallization (Czochralski method, vacuum of less than 10^{-4} Pa) [9]. Crystallization rate R was $\sim 30 \dots 100$ mm/h ($8.33 \cdot 10^{-6} \dots 2.78 \cdot 10^{-5}$ m/s), the temperature gradient G at the solid and liquid phases – 50 ... 100 K/cm.

Metallographic, electron microprobe and microscopic analyzes of the crystals were conducted. Microstructure of n- and p-type silicon crystals was revealed by anodic etching with preliminary polishing using boron carbide 220 and subsequent chemical polishing in a mixture of HF(48%):HNO₃(58%) = 10:15 acids solution. Longitudinal and lateral sections of the samples were examined. One side of the sample was nicked, the other one was immersed in the electrolyte, a platinum plate served as a cathode. For the n-type samples current density was 15-20 mA/cm², temperature – 5-15 °C, time of etching τ – 5-7 min, for p-type – the current density was 50-60 mA/cm², T – 5-10 °C, τ – 10-12 min.

Dislocation decoration in silicon was conducted using copper diffusion at a temperature of about 900 °C. Coating with a layer of nitrate copper followed by hydrogen heating was implemented. Upon heating copper diffuses along the interstices and segregates along the dislocation lines. Since silicon is not transparent to visible light, dislocations were observed using infrared rays.

In this paper conductivity type, resistivity (four-probe method) and nonequilibrium carriers' lifetime were determined before and after the heat treatment of p-type (vacuum $<10^{-4}$ Pa, 800 and 1200 °C) samples. Conductivity type was determined using a thermal probe and a current-voltage characteristic. The minority carriers' lifetime – using photoconductive decay method [2,9].

RESULTS AND DISCUSSION

During metallographic analysis of the samples, it was found that the nature of n- and p-type silicon crystals etching is different. This is explained by a different electrochemical behavior of studied semiconductor materials in electrolyte solutions. A relatively small concentration of free charge carriers ($\sim 10^{-8}$ wt.%) in semiconductors influences the structure of the double electrical layer formed at the semiconductor-solution interface. In metals, electric charge is concentrated in the surface layer of the depth of 10^{-8} cm. In semiconductors, volume charge layer depth depends on the carrier quantity and can be up to 10^{-5} - 10^{-4} cm. Participation of the charge carriers of the opposite sign in electrochemical reactions determines different behavior of silicon monocrystals of electron and hole conductivity type in electrolyte solutions. On the p-type silicon electrode, where major charge carriers are holes, anodic process occurs smoothly and anodic behavior of the electrode is not very different from the one of a metal. N-type silicon – holes are minority charge

carriers, their concentration in the volume is small. As a result, rate of anodic process is determined by the rate of volume charge layer generated holes' inflow to the electrode surface. It was determined that all the factors that contribute to the increase of holes in the near-electrode space concentration: surface lightning, semiconductor heating, holes injection, etc; increase the n-type silicon anodic dissolution rate. Etching developed technique is of undoubted interest in solar modules production.

It was found that during a crystal growth using Czochralski method, impurities' concentration decreases. Its impact is equivalent to one pass of a molten zone in floating-zone refining method. It should be noted that in order to suppress a movement of fluid flows in electrically conductive melt and prevent a non-uniform impurities distribution in the growing crystal, the crucible with the melt was placed in a magnetic field, which slows the movement of the conductive melt. Magnetic viscosity effect – an increase of melt viscosity in the magnetic field to a value that exceeds its own kinematic viscosity is observed. Purification efficiency is determined by the distribution coefficient (k) of impurities in solid and liquid phases, according to expression [14]

$$k = \frac{k_0}{[k_0 + (1 - k_0) \exp(-R\delta / D_1)]}, \quad (1)$$

where k_0 is equilibrium distribution coefficient; R – linear crystallization rate, cm/s; δ – diffusion layer thickness, cm; D_1 – dopant diffusion coefficient in the melt, cm^2/s . Diffusion layer thickness, which is present in (1) can be determined from an empirical relation $\delta = 1.6D_1^{1/3} \nu^{1/6} \omega^{-1/2}$, where ω – crystal rotation frequency, s^{-1} ; ν – kinematic melt viscosity, cm^2/s .

Maximum impurities' solubility in silicon is observed at temperatures of 1100-1300 °C, and is estimated using distribution coefficient between solid and molten silicon. Tetrahedral covalent radii of boron and phosphorus are 0.88 and 1.10 Å, respectively. Maximum boron solubility (at 1200 °C) is $5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (0.38 wt.%), phosphorus (at 1150 °C) – $1,3 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ (2,8 wt.%). It is determined that boron and phosphorus dopants diffuse in accordance with the vacancy mechanism during solar cell operation. It was also established that such impurities as Li, Cu, Au, diffuse through the crystal lattice interstices at high velocities.

It was determined that the most effective purification is observed for Zr, Mo, W, Ta, Nb, Cd, Bi, as well as a quite effective removal of such metals as Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Zn, Ni, Cu, Ga, Ag.

Silicon nitride crucibles (instead of quartz ones) and tungsten heaters (instead of graphite ones) that were used in the current study allowed to significantly reduce the content of harmful impurities. This way, oxygen concentration in the product was $2 \cdot 10^{15} - 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ($2,29 \cdot 10^{-6} - 2,29 \cdot 10^{-7}$ wt.%), carbon part – $5 \cdot 10^{16} - 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ($4,29 \cdot 10^{-5} - 4,29 \cdot 10^{-6}$ wt.%), nitrogen portion – $< 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ (10^{-9} wt.%).

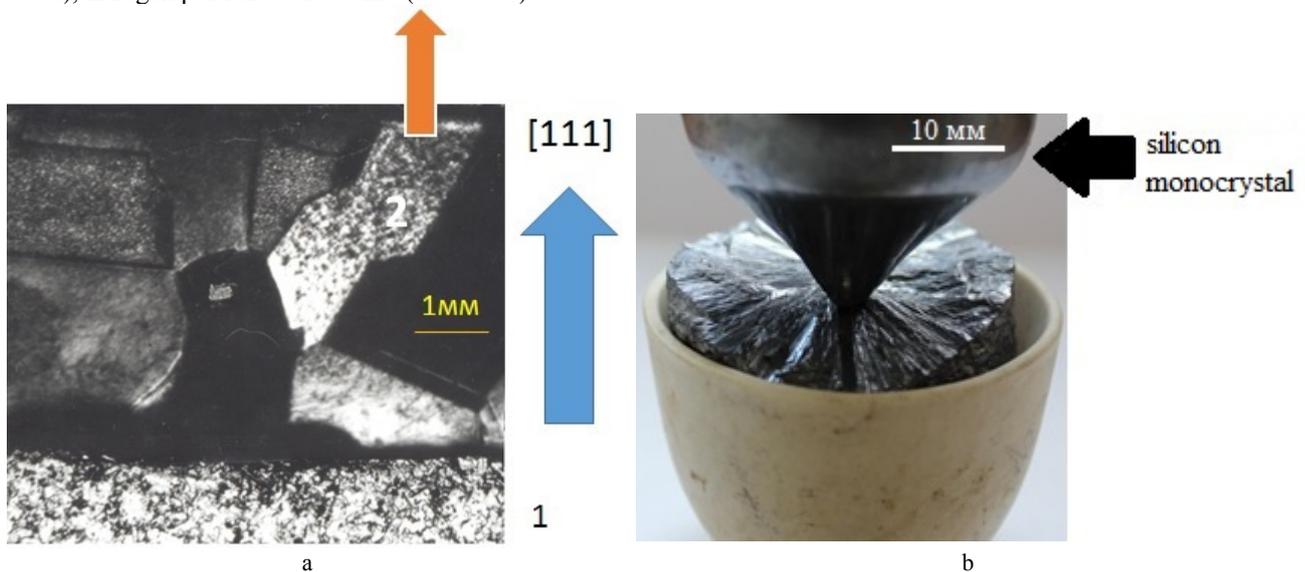


Fig. 2. Formation of monocrystal silicon structures
a - selective crystal growth (the arrow indicates direction of the growth), b - monocrystalline silicon.

A monocrystal seeds with [111], [110] and [100] orientations were used for doped silicon monocrystals grows. Fig. 2 shows the character of monocrystal structure formation.

As can be seen from the Fig., under certain conditions, grains did not have the same orientation throughout their volume. Selective growth of monocrystal grains was observed. It has been found that acceptor and donor impurities concentration of one atom per million (P – $1,1 \cdot 10^{-6}$ wt.%, B – $3,86 \cdot 10^{-7}$ wt.%) is sufficient to cover the grain boundaries that consist of pure silicon, with a layer of impurity atoms.

It has been determined that while crystal growth with the [100] and [111] orientations, significantly fewer dislocation density ($< 10^2 \text{ cm}^{-2}$) than in the [110] and [112] orientations is observed.



Fig. 3. Growth dislocations in silicon crystals.

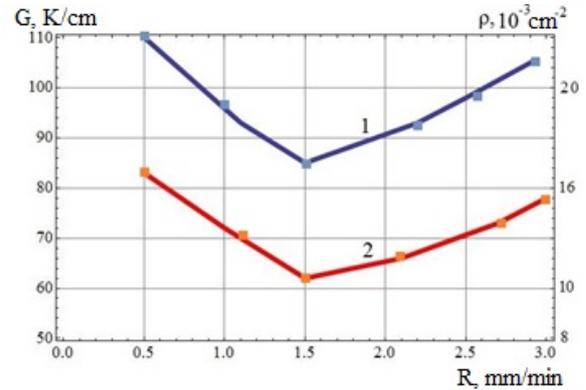


Fig. 4. The influence of the crystallization rate on the temperature gradients along the axis of the crystals (1) and the average dislocation density (2).

For silicon monocrystals with low ρ_d growth the "overclamping" method was used. It involves supersaturation with vacancies near the crystallization front of the growing crystal by increasing the crystallization rate and temperature gradient. This facilitates the dislocations inflow to the surface of the crystal and prevents dislocations from penetrating the growing crystal (Fig. 3). According to the calculations, equilibrium concentration of vacancies in silicon at room temperatures is $10^7 - 10^8 \text{ cm}^{-3}$, and that it increases to $10^{17} - 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ when temperature is raised up to 1000 °C.

With the help of radiometal and electron microscopic analyses dislocation loops, vacancy clusters and their complexes were revealed. During the crystal growth microdefects (MD) were formed as a result of impurity complexes capturing by a growing crystal. In the post-crystallization period MD formation was observed as a result of the supersaturated solid solution decomposition.

The influence of the rate of growing silicon on the dislocation density during directional crystallization was determined (Fig. 4).

Analysis of the obtained data (Fig. 4) shows that the change in the average dislocation density of silicon monocrystals correlates with the change of the maximum radial temperature gradient value in range of studied crystallization rates. This dependence is exponential. In order to reduce the dislocation density, it is expedient to have the maximum value of G observed not at the crystallization front, but in the volume of the growing crystal. The lowest value of the maximum radial G in the crystal was observed when the phase boundary was slightly convex to the melt. It was $\sim 10-15 \text{ }^\circ\text{C}$ and corresponded to the minimum of observed values of $\rho_d = 3.4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-2}$.

Fig. 5 shows the etch pits and dislocations found in n- and p-type silicon monocrystals. Dislocation density in the most perfect crystals was less than 10^2 cm^{-2} .

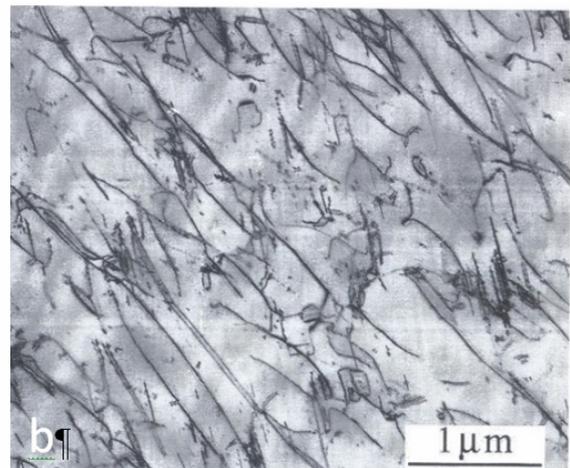
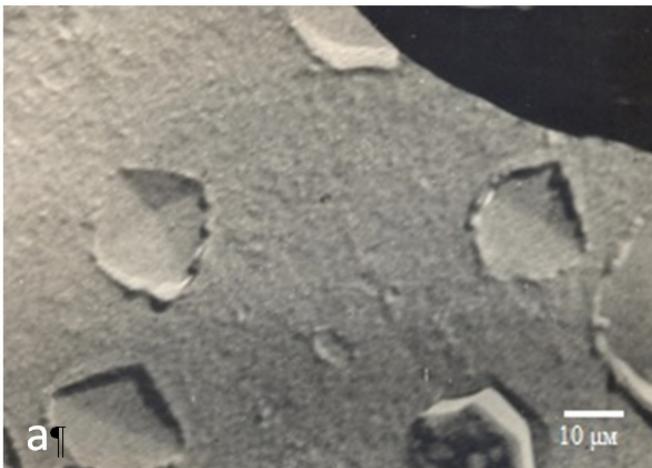


Fig. 5 Silicon microstructure
 a - etch pits, b - dislocation structure.

It is known that heat treatment of the semiconductor materials leads to a substantial change in minority carriers lifetime, however, the relationship between the magnitude of the dislocation density in doped silicon monocrystals and

thermal stability, electrical properties remains unclear. Typically, heat treatment leads to a significant reduction of carriers lifetime. In order to avoid harmful effects of heat treatment, preparatory treatment with special organic reagents of silicon monocrystals surface, annealing in chlorine containing atmosphere, coarse sanding, ion bombardment and other methods are used.

In various papers authors claim that they are studying "dislocation-free" silicon crystals, but at the same time, it is known that the most perfect monocrystals with low dislocation density are whisker crystals with the dislocation density ρ_d of $\leq 10^1$ - 10^2 cm^{-2} [17, 18].

It is also known that the rate of dopants diffusion along dislocations is 10^6 - 10^7 times greater than the rate of volume and grain boundary diffusion [19]. This is likely to be the reason why monocrystals with a high dislocation density are more sensitive to surface impurities' influence and their nonequilibrium carriers' lifetime alters more significantly after diffusion annealing.

In this paper the effect of p-type samples heat treatment (vacuum $< 10^{-4}$ Pa, 800 and 1200 °C) on the type of conductivity, resistivity and nonequilibrium charge carriers' lifetime τ is revealed (Table 1).

As can be seen from the table, when heated up to 1200 °C, the difference in the value of dislocation density has no significant effect on the τ – post-heat treatment minority carriers' lifetime. On the contrary, when heated up to 800 °C the difference in the value of dislocation density influences the change of τ heavily. In dislocation-free crystals ($\rho_d < 10^2$ cm^{-2}) the lifetime has virtually unchanged after the heat treatment, while in crystals with $\rho_d = 10^4$ cm^{-2} it was 8 times less. The findings may serve as an indirect evidence of a significant influence of impurity diffusion from the surface into the volume of a crystal on the reduction of nonequilibrium carriers' lifetime in silicon after being heated up to 800 °C.

Table 1.

Influence of dislocation density on the change of electrical properties of silicon.

At 800 °C				
Properties before heat treatment			After	
Dislocation density, cm^{-2}	ρ , Ohm·cm	τ , μs	ρ , Ohm·cm	τ , μs
$5 \cdot 10^4$	10.8	39	12.9	5
$2.3 \cdot 10^4$	11.9	37.4	13.1	4.6
$4.5 \cdot 10^4$	13.7	37	13.6	5.4
$< 10^2$	54	19	60.5	18
$< 10^2$	67	20	49	15
$< 10^2$	70	17	65.4	16
At 1200 °C				
$> 10^4$	12.3	27	12	< 3
$5 \cdot 10^4$	11.9	23	15.4	< 3
$3 \cdot 10^4$	12.4	27	13.4	< 3
$< 10^2$	51	23	66.6	< 3
$< 10^2$	68	39	64	< 3
$< 10^2$	56.5	21	70.1	< 3

CONCLUSIONS

The optimal n- and p-type silicon monocrystals formation conditions were determined. During the crystallization with high values of G and R oversaturation with vacancies of the growing crystal near the crystallization front is observed. For [111] seed orientation this helps dislocations to come to the surface of a crystal.

Distinctive features of the n- and p-type silicon monostructure revealing that are associated with the existence of the electric double layer formed at the semiconductor-solution surface, were determined. Surface lightning, semiconductor heating, injection of the holes, etc. increase the rate of anodic dissolution of n-type silicon. Interconnection of the dislocation structure of the crystals, crystallization rate and temperature gradient was revealed. The minimal silicon perfect monocrystals' dislocation density was 10^2 cm^{-2} .

High-temperature heat treatment of the n-type samples (up to 1200 °C) with different dislocation density has no significant impact on the nonequilibrium carriers' lifetime. A similar pattern is observed in the case of heat treatment with < 800 °C of crystals with low dislocation density. In doped perfect silicon monocrystals with $\rho_d < 10^2$ cm^{-2} lifetime virtually unchanged after the heat treatment. There was an evident decrease of the minority carriers' lifetime (8 times less) of the crystals with high dislocation density (heat treatment ≤ 800 °C), which is caused by the impurity (O_2) and recombination centers' diffusion from the surface into the volume of the crystal.

REFERENCES

1. Chang K. Solar cells and their applications, 2nd ed. Part II, VI – John Wiley & Sons, 2010. - 644p.
2. Rodionov Y.A. Basic technological processes in microelectronics. (In russian). – Minsk: Educatoinal Institution "Belarusian State University of Informatics and Radio Electronics", 2006. – 135p.

3. Borts B.V., Nikludov I.M., Tkachenko V.I. et al. Alternative hydrogen sulfide energy. Part III (in russian) // Alternative energy and ecology. – 2009. – No.4. – p.12-19.
4. Alferov Zh. I., Andreev V. M., Rumyantsev V. D. Trends and Perspectives of Solar Photovoltaics (in russian) // PTS. – 2004. – Vol. 38. – Is.8. – p. 937-948.
5. Semenenko V., Ovcharenko A. Influence of Heat Treatment On The Strength Of The Mo-Zr-C Alloys // PAST. Pure Materials, Superconductors series. – 2014. - No.1(89). - P. 120-125.
6. Shapovalov V.A. Solar Silicon (in russian) // PAST. Vacuum, Pure Materials, Superconductors series. - 2014. - No.1 (89). - P. 53-55.
7. Arkhipov V., Poortmans J. Thin Film Solar Cells Fabrication, Characterization and Applications. – Wiley Series in Materials for Electronic and Optoelectronic Applications, 2006, – 504 p.
8. Fujiwara K., Obinata Y., Ujihara T., Usami N. et al. Structure of semiconductor materials // J. Crystal Growth. - 2004. - Vol. 266. - P. 441.
9. Semenenko V.E., Ovcharenko A.I. Monocrystalline Silicon Microstructure and Properties // International Scientific Conference "Physical and Technical Problems and their Solutions 2014." – Kharkiv: Kharkiv National University, 2014. – P. 41.
10. Nemchinova N.V, Klets V.E., Nepomnyashih A.I. Silicon in XXI century (in russian) // Fundamental research. - 2006. - No.12. - P. 13-17.
11. Schwirtlich I. EFG, ein kostengünstiges Produktions verfahren für Si-Wafer // Innovationsforum "Solar Innovativ Thüringen". – Erfurt, 26/27 Oktober 2006.
12. Nanostructural coatings, edited by A. Kavaleyro and D. de Hossona. – Moscow: Technosphere, 2011. - 792 p.
13. Bolotnikov A.E., Boggs S.E., Chen H.C.M. et al. Properties of Pt Schottky type contacts on high-resistivity CdZnTe detectors // Nucl. Instr. and Meth. A. – 2002. - Vol. 482. - P. 395-407.
14. Report Citation REN 21.2011. Renewables 2011 Global status report (Paris: REN21 Secretariat), 116 p.
15. Boltacs B. I. Diffusion in Semiconductors. – Moscow: Printing office No.5, 1961. - 462 p.
16. Azarenkov N.A., Semenenko V.E., Leonovich A.V. Bimonocrystall materials – In Situ Refractory Microcomposites // Journal of Kharkiv National University, physical series «Nuclei, Particles, Fields». - 2013. – No.1041, issue 2 /58/. - P. 111-115.
17. Semenenko V.E., Pylypenko M.M., Poznyakov V.A. Dislocation Structure of the Natural Microcomposition Materials (in russian) // Past, Vacuum, Pure Materials, Superconductors series. – 2009. – Vol. 64, No.6. – P. 227-233.
18. Druzhinin A.A., Ostrovsky I.P., Hoverko Y.N. et al. Silicon Whiskers Preparation // Nanosystems, nanomaterials, nanotechnology. – 2011. – Vol. 9, No.4. – P. 925-932.
19. Azarenkov N.A., Semenenko V.E., Stervoyedov N.G. et al. The Effect of Diffusion Processes on Structural Stability and Durability of Natural Microcomposites // PAST. Physics of Radiation Effect and Radiation Materials Science series. – Vol. 97. – 2011. – P. 149-154.

PACS: 61.72.jd, 61.72.Dd

INTRINSIC POINT DEFECTS IN ANISOTROPIC CRYSTALLINE SYSTEMS (QUASI-TWO NbSe₂ AND QUASI-ONE NbSe₃)

A.A. Mamalui*, T.N. Shelest*, N.B. Fatyanova*, K.A. Minakova*, N.N. Galtsov**

** National Technical University "Kharkiv Polytechnic Institute"*

4 Frunze St., Kharkov Ukraine

*** B.Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering of the NAS of Ukraine*

47 Lenin Ave., Kharkov, Ukraine

E-mail: kseniatrushina@list.ru

Received July 14, 2014

Established that the resulting of heat treatment of single crystals of NbSe₂ and NbSe₃ formed selenium vacancies. With the complex investigation of the temperature dependences of resistance NbSe₃ and NbSe₂ in different environments (air, vacuum, argon vapor selenium) in the field of 300 - 550 K, the investigations of the relative change of the linear dimensions NbSe₂, and the X-ray diffraction investigations have shown that during heat treatment NbSe₃ and NbSe₂ formation of selenium vacancies, which cause a deviation from the linear dependence of the resistance. The presence of selenium vacancies decreases the dimensions of the samples along NbSe₂ layers and increases the lattice parameters. Found that the effective energy of vacancy selenium in quasi-single crystals NbSe₂ decreases on the exposure time, that is, with increasing concentration of vacancies of selenium.

KEY WORDS: electrical resistivity, quasi two-dimensional monocrystals NbSe₂, quasi one-dimensional monocrystals NbSe₃, point defects, selenium vacancies

ВЛАСНІ ТОЧКОВІ ДЕФЕКТИ В АНІЗОТРОПНИХ КРИСТАЛІЧНИХ СИСТЕМАХ (КВАЗИДВОВИМІРНИХ NbSe₂ І КВАЗИОДНОВИМІРНИХ NbSe₃)

А.О. Мамалуй*, Т.М. Шелест*, Н.Б. Фат'янова*, К.О. Мінакова*, Н.Н. Гальцов**

*** Національний технічний університет «Харківський політехнічний інститут»*

м. Харків, вул. Фрунзе, 4, Україна

** Фізико-технічний інститут низьких температур НАН України ім. Б.І. Веркіна*

м. Харків, пр. Леніна, 47, Україна

Встановлено, що в результаті термообробки в монокристаллах NbSe₂ і NbSe₃ утворюються вакансії селену. За допомогою комплексного дослідження температурних залежностей опору NbSe₃ і NbSe₂ в різних середовищах (повітря, вакуум, аргон з парами селену) в діапазоні температур 300-550 К, досліджень відносної зміни лінійних розмірів NbSe₂, а також рентгеноструктурних досліджень показано, що при термічній обробці NbSe₃ і NbSe₂ утворюються вакансії селену, які обумовлюють відхилення опору від лінійної залежності. Наявність вакансій селену призводить до зменшення розмірів зразків NbSe₂ уздовж шарів та до збільшення параметрів решітки. Встановлено, що ефективна енергія утворення вакансій селену в квазидвовимірних монокристаллах NbSe₂ зменшується від часу витримки, тобто з ростом концентрації вакансій селену.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: електричний опір, квазидвовимірні монокристали NbSe₂, квазіодномірні монокристали NbSe₃, точкові дефекти, вакансії селену

СОБСТВЕННЫЕ ТОЧЕЧНЫЕ ДЕФЕКТЫ В АНИЗОТРОПНЫХ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ СИСТЕМАХ (КВАЗИДВУМЕРНЫЕ NbSe₂ И КВАЗИОДНОМЕРНЫЕ NbSe₃)

А.А. Мамалуй*, Т.Н. Шелест*, Н.Б. Фат'янова*, К.А. Минакова*, Н.Н. Гальцов**

*** Национальный технический университет «Харьковский политехнический институт»*

г. Харьков, ул. Фрунзе, 4, Украина

** Физико-технический институт низких температур НАН Украины им. Б.И. Веркина*

г. Харьков, пр. Ленина, 47, Украина

Установлено, что в результате термообработки в монокристаллах NbSe₂ и NbSe₃ образуются вакансии селена. С помощью комплексного исследования температурных зависимостей сопротивления NbSe₃ и NbSe₂ в различных средах (воздух, вакуум, аргон с парами селена) в интервале температур 300 –550 К, исследований относительного изменения линейных размеров NbSe₂, а также рентгеноструктурных исследований показано, что при термической обработке NbSe₃ и NbSe₂ образуются вакансии селена, которые обуславливают отклонение сопротивления от линейной зависимости. Наличие вакансий селена приводит к уменьшению размеров образцов NbSe₂ вдоль слоев и увеличению параметров решетки. Установлено, что эффективная энергия образования вакансий селена в квазидвумерных монокристаллах NbSe₂ уменьшается от времени выдержки, то есть с ростом концентрации вакансий селена.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: электрическое сопротивление, квазидвумерные монокристаллы NbSe₂, квазіодномірні монокристаллы NbSe₃, точечные дефекты, вакансии селена

Intrinsic point defects in metal crystals have traditionally attracted a keen interest of researchers. By means of intrinsic point defects implemented process diffusion mobility in condensed matter Point defects (mainly vacancies) occur in the lattice of metals in the pre-melting temperatures and also in the presence of a variety of external influences (high-energy particle radiation, plastic deformation, rapid changes in temperature over a wide range), which are often subjected to materials in the implementation of service functions.

A unique experimental method of "small perturbations" (because of the small value of the equilibrium concentration at high temperatures $C_V \leq 10^{-2}$ at. % [1]) is an opportunity to experimentally modify the properties of metals due to the presence of intrinsic point defects, periodically returning to the main defect-free state as a result of rapid heating or cooling. This method can correctly identify changes in the properties of metals due to the presence of vacancies.

The formation of representations about the vacancies in metals is an opportunity to test the main outstanding ideas of modern solid state physics about the peculiarities of the phonon and electron spectra, the electron-phonon interaction in metals [2, 3]. This applies to the model of single vacancies in metals as an analogue of the substitutional impurity "zero" valence and weight [4, 5].

A special interest is the solution of such issues for a sharply anisotropic lattice - in the case of quasi-crystals of low-dimensional systems (2d and 1d). It is known that for the lattice high-temperature superconductors are characterized by low-dimensional structures (for example, $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ - quasi one-dimensional chain CuO , quasi-two-plane CuO_2), containing a significant number of point defects (vacancies of oxygen) [6,7]. The complicated structure of high-temperature superconductors makes the interpretation of the results of investigation of the influence of defects in such systems on their properties. At the same time, the study of systems which possess or quasi one-dimensional or two-dimensional quasi structural elements can greatly simplify analysis of the experimental results.

Theoretically, the transition metal chalcogenides are model systems for the study of physical phenomena inherent in systems with reduced dimensionality. For example, a study of the kinetic and thermodynamic properties of low-dimensional crystals with point defects topical due with the problem of stability of the crystal lattice.

The typical representatives of transition metal chalcogenides are quasi two-dimensional monocystals $NbSe_2$ and quasi one-dimensional monocystals $NbSe_3$.

THE OBJECTS OF INVESTIGATION

A quasi two-dimensional monocystals $NbSe_2$ have a layered structure in the form of sandwiches each of which consists of two layers of selenium atoms and niobium layer there between. The connection of atoms Nb and Se in the sandwich is relatively strong (predominantly covalent). The layers $NbSe_2$ are interconnected in a crystal by weak van der Waals forces. Monocystals $NbSe_2$ are known in the three versions: type 2H - $NbSe_2$, 3R - $NbSe_2$ and 4H - $NbSe_2$ [8].

Of all known modifications $NbSe_2$ is the most studied 2H - $NbSe_2$. 2H - $NbSe_2$ is a metallic conductor type with a hole conductivity at temperatures above 26K. The hole concentration is $1.4 \times 10^{22} \text{ sm}^{-3}$ [8]. The temperature for $NbSe_2$, according to [8], is $T_D = 222 \text{ K}$. At the temperature of 7.2 K niobium diselenide becomes superconducting. At the temperature of $T_P = 35 \text{ K}$ $NbSe_2$ undergoes a Peierls transition with the formation of a charge density wave (CDW).

The quasi one-dimensional crystals $NbSe_3$ made up of chains formed by trigonal prisms of selenium atoms. In the center of the prisms is niobium atom. Monocystals $NbSe_3$ have a monoclinic lattice with a spatial group $P2_1/m$. The concentration of charge carriers at room temperature is $n \sim 10^{21} \text{ sm}^{-3}$. On the temperature dependence of the electrical resistance observed two large anomalies at the $T_{P1} = 145 \text{ K}$ and $T_{P2} = 52 \text{ K}$ are caused by the two independent Peierls transition and the formation of a CDW [10].

POINT DEFECTS IN LOW-DIMENSIONAL STRUCTURES (LDS)

A significant effect on the properties of low-dimensional systems is the presence of point defects, in particular vacancies. The basic methods of creating relatively significant concentration of point defects are the radiation and high-temperature heating. These methods have substantial differences. Irradiating the crystals with high-energy particles are generated different types of defects - internodes, vacancies and their complexes.

Study the influence of irradiation on the properties of low-dimensional chalcogenides is dedicated to a considerable amount of articles [11 - 14]. In the article [11] their irradiation of $NbSe_2$ by electrons (2.5 MeV) leads to a decrease in the temperature of the superconducting and CDW transitions. In the article [11] irradiation of $NbSe_3$ electrons (under 3 MeV) leads to an increase in residual resistance, which is associated with the disorder in the article lattice and electron localization, in the [12] is associated with the disorder in the lattice and the localization of the conduction electrons. The irradiation of $NbSe_3$ by protons (2.5 MeV) [13] has on the temperature dependence of the resistance is the same effect as the electric field, that is, leads to the suppression of the CDW.

In the article [14] found that irradiation of 2H - $NbSe_2$ by fast electrons leads to a redistribution of electron density, namely, to an increase in the planes with a high packing density - base and prismatic - $\{110\}$, $\{210\}$. The appearance of the diffuse scattering of X-rays and electrons at high doses is associated with an increase in the density of the electron Fermi liquid.

A small number of works is dedicated to the study of the influence of defects produced by heating and rapid cooling (quenching) on the physical characteristics of the studied LDS [15, 16]. In the article [15] monocystals were heated to 620 C for about 4 minutes and then subsequent rapid (less than one second) cooling to ambient temperature. It was found that as a result of quenching of the CDW transitions are suppressed and the superconducting state is realized at 7.2 K. It is caused by the transformation of $NbSe_3$ in to $NbSe_2$ in the heat treatment.

In the article [16] established that at a deviation from the stoichiometric composition (31.7 - 34.3 at. % Nb) 2H - $NbSe_2$, the degree of the anisotropy the structure is not substantially altered. It is shown the correlation between the state of niobium sublattice and the critical temperature of the superconducting transition. Thus, almost no literature details on the influence of on the properties of low-dimensional positions systems. Therefore, this work is devoted to the experimental study of the effect of vacancies of Se on the structural and electrical properties $NbSe_2$ and $NbSe_3$.

HIGH-TEMPERATURE RESEARCHES OF THE ELECTRICAL RESISTIVITY AND THE THERMAL EXPANSION

In [17] the creation of vacancies in single crystals of NbSe₃ and NbSe₂ was carried out using degassing selenium atoms with isothermal samples in the region of high temperatures.

On the quasi two-dimensional monocrystals NbSe₂ and quasi one-dimensional monocrystals NbSe₃ explored quasi-temperature dependences of electrical resistivity in the temperature range 300 – 550 K along the layers and along the chains, respectively. Measurements of electric resistance were carried out with direct current by the compensation scheme. We used a standard four-probe method for measurement. Researches carried out in different environments (vacuum, air, argon selenium vapor). At $T > 410$ K there is a significant deviation from the linear dependence on all temperature dependences of the electrical resistivity. Fig. 1 shows a typical temperature dependence of the resistivity of single crystals of NbSe₂.

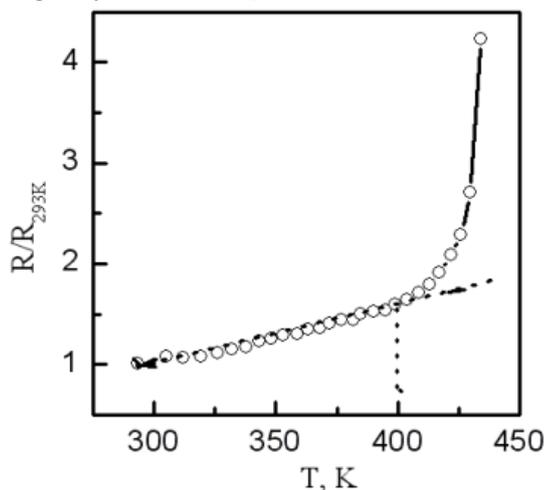


Fig. 1. Temperature dependence of the reduced the electrical resistivity quasi two-dimensional single crystal NbSe₂ in the 300 – 450 K (measured along the layers).

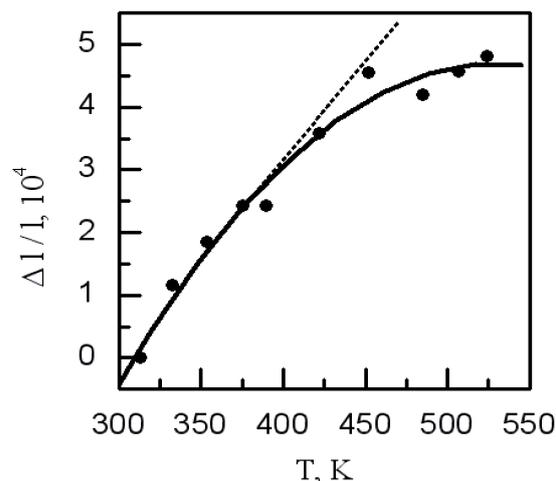


Fig. 2. The relative increase ($\Delta l/l$) length of the splice NbSe₂ of the temperature (T).

As the connection in NbSe₂ saturated and intercalation processes and oxidation processes in NbSe₂ begin only at $T \geq 620$ K [18], we can assume that the observed changes in the electrical resistivity associated with the formation of its own equilibrium point defects (even when heated in air).

To investigate the formation of the lattice relaxation of point defects to splice NbSe₂ 6 mm in length was studied the thermal expansion parallel to the plane (*ab*) during the continuous heating from 300 to 550 K by the standard dilatometer Shevenara. Heating up to 550 K was carried out for 2.5 hours. The temperature dependence of the relative elongation $\Delta l/l$ of the sample NbSe₂ shown in Fig. 2. The figure shows that the temperature dependence of elongation deviates from linearity to lower values and saturates. The temperature of start deviations correlated with the data on the electrical resistivity.

The linear expansion coefficient NbSe₂ decreases by increasing the concentration the equilibrium point defects and its average value is $3 \cdot 10^{-6}$ K⁻¹, which is in agreement with the findings Gavarrri J.R. and others[18]. The relative decrease of the length of the sample at the ambient temperature after high temperature exposure was $\Delta l/l = -0,4$ %. The reducing $\Delta l/l$ agrees well with the mechanism of vacancy selenium caused by discontinuity bonds Nb-Se and Se-Se, followed by degassing selenium atoms, i.e., is caused relaxation of the system due to the presence of selenium vacancies. In this sample was produced X-ray diffractometry analysis (Fig. 3).

It was found that after the heat treatment the sample is a single phase and has a hexagonal structure with lattice parameters $a = 3,456$ Å и $c = 12,591$ Å. Before heating the lattice parameters have values $a = 3,44$ Å и $c = 12,54$ Å. Thus, there is a slight increase in the lattice parameters of the formation of selenium vacancies. The relaxation of atoms surrounding the vacancy, should lead to a shift their in the direction of the vacancies, which is equivalent to the full stretch of the entire lattice in the case of an increase in the lattice parameters (unit cell volume). This process leads to a decrease of the crystal volume. According to [18] layered hexagonal phase is maintained with decreasing selenium up to 57% (at.). The period a varies weakly, and the period c assumes the values intermediates between 12.54 and 13.00 Å. Our values of the lattice periods suggest that in the research process after several exposures to high temperatures 490 K the samples of NbSe₂ retain a layered hexagonal structure and change their properties is caused by presence of selenium vacancies. According to the method described in [19], evaluated Se vacancy concentration, which for this sample was 2.6 % (at.).

For studying the process diffusion redistribution of vacancies selenium and care process selenium from the NbSe₂ measured the electrical resistivity of the samples along the layers during a series of isothermal exposures in the air environment as in the case of HTSC [17]. Fig. 4 shows typical results of measurements in one sample by

consecutive isothermal exposures in the field of 353-453 K. The nonmonotonic character of the dependencies evidence of implementing complex (composite) processes that accompany the formation of vacancies selenium.

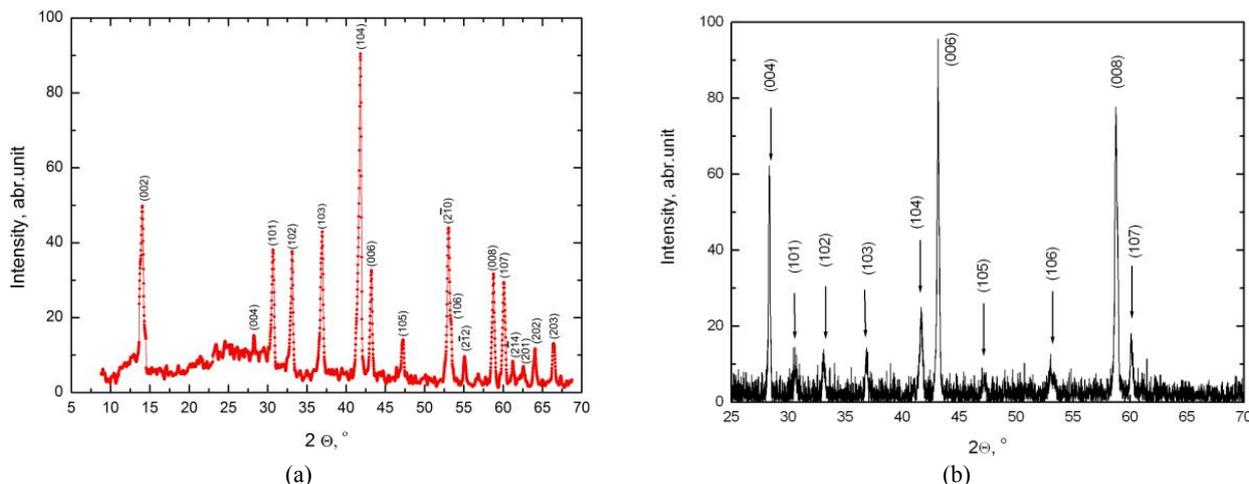


Fig. 3. X-ray diffractometer spectrum of the splice NbSe₂ before (a) and after (b) the high temperature exposure.

The temporary cross section obtained isothermal dependence of the electrical resistivity, which in the rough assumption immutability of character defect, allowed us to estimate the dependence of vacancy formation energy of selenium on the exposure time [17]. Fig. 5 is a plot of the effective vacancy formation energy of selenium on the exposure time for the first series of isothermal exposures. The figure shows that the formation energy decreases with time and exposure energy value ranges $0,8 \div 0,3$ eV.

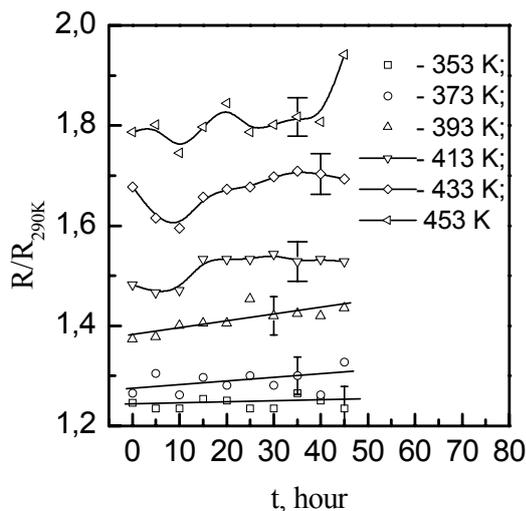


Fig. 4. Isothermal dependence of electrical resistivity NbSe₂.

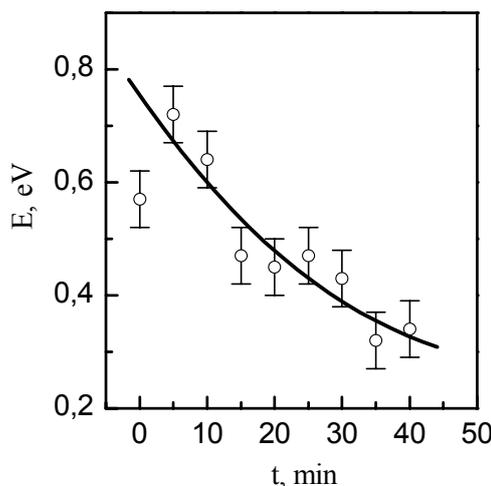


Fig. 5. The dependence of vacancy formation energy of selenium in NbSe₂ on the exposure time.

Decrease in the effective vacancy formation energy of selenium with increasing exposure time can be associated with the dependence of the energy of formation of the vacancy concentration.

The process of formation of a vacancy of selenium must be accompanied by an increase number of carriers in the conduction band due to the electrons, "liberated" from participating in covalent bonds Nb-Se. This injection of carriers in the conduction band should lead to a shift of the Fermi energy to higher values, i.e. to a change in the density of electronic states near the Fermi level, and as a consequence, to a change in the corresponding thermodynamic and kinetic properties. In addition, due to of this injection of carriers in the conduction band should be a redistribution the values of the binding energy due to changes in the electrostatic contribution. We can conclude that the experimentally observed decrease of the effective vacancy formation energy of selenium according to the time of exposure conditioned by weakening of bonds Nb-Se and strengthening links Nb-Nb as the concentration of selenium vacancies by increasing the carrier concentration in the layers of Nb.

Decrease in the effective energy, characterized by the formation of vacancies with increasing concentration can also be associated with the formation of vacancy clusters, or structural transformations, as in the area observed change in selenium content in the sample. According to the phase diagram in the sample can be some weakly different polymorphs [13].

REFERENCES

1. Mamalui A.A. Vacancies in metals. Pidruchnyk NTU "KhPI". - Kharkiv, 2012. – 218 p.
2. Mamalui A.A., Pervakov V.A., Khotkevicii V.I. On a nature of high temperature sines for vacancies in Mo and W // Phys.Stat.Sol. – 1975. – Vol. 29. – P.21-25.
3. Mamalui A.A., Ovcharenko S.O. About of correlation T_c and temperature dependence of electroresistance for transition metals with point defects // Sov. Phys. Sol. State – 1975. - Vol. 31. - No. 2. - P.171-174.
4. Harrison W.A. Pseudopotentials in the Theory of Metal. - Benjamin, 1966. – P.153-263.
5. W. A. Harrison The theory of interatomic potentials in solids // Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects. – 1972. - Vol. 15. - No. 1. - P. 69 -90.
doi; 10.1007/978-1-4684-1992-4_3
6. Ginzburg V.L., Kirzhnitsa D. A. High-temperature superconductivity. New York: Consultants Bureau, NY, 1982. – 400 p.
7. Jorgenson J.D., Veal B.W., Kwok W.K., Crabtree G.W., Umezawa A., Nowicki L.J., Paulicas A.P. Structural and superconducting properties of orthorhombic and tetragonal $YBa_2Cu_3O_{6+x}$: The effect of oxygen stoichiometry and ordering on superconductivity - Phys. Rev. Ser. B. – 1987. – Vol. 36. - No. 10. - P.5731-5734.
8. Kalikhman V.L., Umanskii Ya.S. Transition-metal chalcogenides with layer structures and features of the filling of their brillouin zones // Sov. Phys. Usp. – 1973. - Vol. 15. - P.728–741.
doi : 10.1070/PU1973v015n06ABEH005061
9. Harper J.M.E., Geballe T.H., Di Salvo F.J. Thermal properties of layered transition-metal dichalcogenides at charge-density-wave transitions // Phys. Rev. B. – 1977. - Vol. 15. - No 6. - P.2943-2951.
10. Fedorov V.E. Chalcogenides of transition refractory metals. Quasi-one connections. - N.: Nauka. Sib. department, Novosibirsk, 1988. – 222 p.
11. Mutka H. Superconductivity in irradiated charge-density-wave compounds 2H - NbSe₂, 2H - TaS₂, and 2H - TaSe₂ // Phys. Rev. B. – 1983. - Vol. 28. - No. 5. – P.2855-2858.
12. Monceau P., Richard J., Lagnier R. Effect of electron irradiation on the non-linear properties of NbSe₃ // J. Phys. C.: Solid State Phys. – 1981. - Vol. 14. - No. 21. - P.2995-3004.
13. Fuller W.W., Grüner G., Chaikin P.M., Ong N.P. Effect of radiation damage on the charge-density-wave dynamics in NbSe₃ // Phys. Rev. B. – 1981. - Vol. 23. - No. 12. - P.6259-6264.
14. Fuller W.W., Tritt T.M., Hoff H.A., Zettl A. Effect of heating and rapidly quenching NbSe₃ crystals // Phys. Rev. B. – 1990. - Vol. 41. - No. 3. - P.1671-1672.
15. Antonova .E.A. Kiseleva K.V., Medvedev S.A. Superconductivity in layered structures // The Physics of Metals and Metallography – 1969. - Vol. 27. - No. 3. - P. 441-445.
16. Mamalui A.A., Shelest T.N., Fatyanova N.B., Sirenko V.A. The influence of point defects on the temperature dependence of quasi-two-dimensional 2H-NbSe₂ resistivity // Functional Materials – 2005. - Vol. 12. - No. 3. - P.521-525.
17. Obolonchik V.A. Selenides - M.: Metallurgy, Moscow, 1972. – 295 p.
18. Gavarrri J.R., Mokrani R., Vacquier G., Boulesteix C. Relations between anisotropic defects, structural evolution and van der Waals bonding in 2H-NbSe₂ // Phys. Stat. Sol. (a). – 2009. - Vol. 109. - No. 2. - P.445-454.
19. Damask A., Deans J. Point Defects in metals [Russian translation] - Mir, Moscow, 1966. – 201 p.

PACS: 29.17.+w; 41.75.Lx

TRANSFORMATION RATIO AT PLASMA WAKEFIELD EXCITATION BY LASER PULSE WITH RAMPING OF ITS INTENSITY ACCORDING TO COSINE

V.I. Maslov, O.M. Svystun

National Science Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology" NASU,

1, Akademichna St., Kharkiv, 61108, Ukraine

E-mail: svystun_elen@mail.ru, vmaslov@kipt.kharkov.ua

Received August 29 2014

Plasma wakefield excitation by shaped laser pulse, the intensity of which slowly increases up to its maximum in longitudinal direction according to cosine and sharply cuts off at the tail of the pulse, is numerically simulated with the purpose to increase the transformation ratio. The transformation ratio determines the maximum energy, to which electrons can be accelerated, and it is estimated by the ratio of the amplitude of the wake wave after the pulse and the amplitude of the plasma perturbation within the pulse. The length of the shaped laser pulse is selected to be longer than the plasma wavelength. The radius of the pulse is selected to be much smaller than its length. It is shown that for the considered type of laser pulse shaping with these parameters the transformation ratio can be much larger than the limiting value of two, which follows from Wilson theorem developed for particle bunch, and which corresponds to any symmetric particle distribution in a bunch.

KEY WORDS: plasma wakefield excitation, laser pulse, transformation ratio, numerical simulation, asymmetric distribution

КОЕФІЦІЄНТ ТРАНСФОРМАЦІЇ ПРИ ЗБУДЖЕННІ КІЛЬВАТЕРНОГО ПОЛЯ В ПЛАЗМІ ПРОФІЛЬОВАНИМ ЛАЗЕРНИМ ІМПУЛЬСОМ ІЗ НАРОСТАЮЧОЮ ЗА КОСИНУСОМ ІНТЕНСИВНІСТЮ

V.I. Маслов, О.М. Свистун

Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут» НАНУ

вул. Академічна, 1, Харків, 61108, Україна

Проведено 2d3v-числове моделювання збудження кильватерного поля у плазмі профільованим лазерним імпульсом із метою збільшення коефіцієнта трансформації. Інтенсивність лазерного імпульсу повільно наростає за косинусом у поздовжньому напрямку від переднього фронту до максимуму і потім різко обривається на задньому фронті. Коефіцієнт трансформації визначає максимальну енергію, до якої можуть бути прискорені електрони, і оцінюється відношенням амплітуди кильватерної хвилі після імпульсу і амплітуди збурення плазми всередині імпульсу. Довжина профільованого лазерного імпульсу вибрана таким чином, щоб бути більшою за плазмову довжину хвилі. Радіус імпульсу вибран так, щоб бути набагато меншим його довжини. Показано, що з такими параметрами та типом профілювання лазерного імпульсу, що розглядається, коефіцієнт трансформації значно перевищує граничне значення 2, що впливає з теореми Вільсона, яка розвинена для згустку заряджених частинок, і відповідає випадку збудження кильватерної хвилі у плазмі згустком із симетричним розподілом заряджених частинок.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: збудження кильватерного поля у плазмі, лазерний імпульс, коефіцієнт трансформації, числове моделювання, асиметричний розподіл

КОЭФФИЦИЕНТ ТРАНСФОРМАЦИИ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ КИЛЬВАТЕРНОГО ПОЛЯ В ПЛАЗМЕ ПРОФИЛИРОВАННЫМ ЛАЗЕРНЫМ ИМПУЛЬСОМ С НАРАСТАЮЩЕЙ ПО КОСИНУСУ ИНТЕНСИВНОСТЬЮ

V.I. Маслов, Е.Н. Свистун

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт» НАНУ

ул. Академическая, 1, Харьков, 61108, Украина

Проведено 2d3v-численне моделювання збудження кильватерного поля в плазмі профілюваним лазерним імпульсом з метою збільшення коефіцієнта трансформації. Інтенсивність лазерного імпульсу повільно наростає по косинусу в продольному напрямку від переднього фронту до максимуму і потім різко обривається у заднього фронту. Коефіцієнт трансформації визначає максимальну енергію, до якої можуть бути прискорені електрони, і оцінюється відношенням амплітуди кильватерної хвилі після імпульсу і амплітуди збурення плазми всередині імпульсу. Довжина профілюваного лазерного імпульсу вибрана таким чином, щоб бути більшою за плазмову довжину хвилі. Радіус імпульсу вибран набагато меншим його довжини. Показано, що для розглянутого типу профілювання лазерного імпульсу з такими параметрами, коефіцієнт трансформації значно перевищує граничне значення 2, що випливає з теореми Вільсона, розвитої для згустку заряджених частинок, і відповідає випадку збудження кильватерної хвилі в плазмі згустком з симетричним розподілом заряджених частинок.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: возбуждение кильватерного поля в плазме, лазерный импульс, коэффициент трансформации, численное моделирование, асимметричное распределение

For many applications it is important to obtain the beams of high-energy accelerated particles. One of the most effective and promising method for formation of such beams is the acceleration of charged particles in wakefield excited in the plasma by an intense laser pulse [1 – 7]. However, if the laser pulse length does not exceed the length of the plasma wave, the level of plasma perturbations in the laser pulse region and after it (in the wake) are close. The latter leads to the dissipation of the laser pulse on a relatively small spatial interval [8]. In this paper we numerically

examine the physical mechanism of increase of the product of the longitudinal accelerating electric wakefield and the length of the spatial interval in which this field is excited. This product is proportional to the transformation ratio. The transformation ratio can be estimated by the ratio of the amplitude of wake wave behind the laser pulse to the maximum plasma perturbation within the laser pulse. The transformation ratio is always less than or equals 2 for any symmetric particle bunch distribution [9]. We suppose that it is correct for laser pulse. The transformation ratio can be increased by altering the distribution of the driving bunch [9 – 11], the length of which is longer than the plasma wavelength. In papers [9, 10] mechanisms of increase of the transformation ratio are considered for the case of the plasma wakefield excitation by shaped electron bunch. The question arises about possibility of the transformation ratio increasing at the plasma wakefield excitation by shaped laser pulse. To examine the mechanism of plasma wakefield excitation by shaped laser pulse, the intensity of which slowly rises in longitudinal direction according to cosine and sharply cuts off at the tail of the pulse, we numerically simulate the laser pulse interaction with the plasma on the basis of kinetic model. We present the results of fully relativistic electromagnetic two dimensional particle – in – cell simulation, which was performed by a modified version of the UMKA2D3V code (Institute of Computational Technologies) [12 – 14]. The geometry of the considered problem, the parameters of the laser pulses and plasma are as follows. A computational domain (x, y) has a rectangular shape with the following dimensions: $0 < x < 300\lambda$ and $0 < y < 50\lambda$, λ is the laser pulse wavelength. The number of particles per cell is 8 and the total number of particles is $596 \cdot 10^4$. The simulation of each considered case carried out up to 300 laser periods. The period of the laser pulse $t_0 = 2\pi/\omega_0$, where ω_0 is the laser frequency. The s-polarized laser pulse enters the computation region which is filled with uniform plasma from the left boundary and is incident normally on the plasma. The plasma density $n_0 = 0.01016n_c$, where n_c is the critical plasma density. All considered laser pulses have an asymmetric distribution in which the pulse intensity in the longitudinal direction rises gradually according to cosine from the front of the pulse toward the peak and then falls off sharply. All pulses have a Gaussian profile in the transverse direction. The longitudinal dimensions of the laser pulses are selected to be longer than the plasma wavelength and are equal to 30λ at half maximum. The transverse dimensions of the pulses are selected to be less than the length of the pulse and FWHM (full width at half maximum) = 8λ . The considered laser pulse is fully entered in the plasma at the time $t = 75t_0$. The simulations were performed for normalized amplitudes of the laser vector potential, $b_0 = eE_{x0}/(m_e c \omega_0) = 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12$ and 21 where e is the electron charge, E_{x0} is the electric field amplitude, m_e is the electron mass, c is the speed of light. Below coordinates x and y , time t , electric field amplitude E_x and electron plasma density n_0 are given in dimensionless form in units of λ , $2\pi/\omega_0$, $m_e c \omega_0 / (2\pi e)$, $m_e \omega_0^2 / (16\pi^3 e^2)$, correspondingly.

The main aim of this work is the research of the possibility of an increasing the transformation ratio in the Laser Plasma Wakefield Acceleration scheme. For this purpose, a numerical simulation of the wakefield excitation in the plasma by a laser pulse with an asymmetric intensity distribution was carried out.

WAKEFIELD EXCITATION IN PLASMA BY SHAPED LASER PULSE

At first we consider the wakefield excitation by one shaped laser pulse with a low intensity $b_0 = 3$ and $b_0 = 4$. In the case of a laser pulse with an intensity $b_0 = 3$ after 120 laser periods ($t = 120t_0$) from the beginning of the interaction the transformation ratio is equal to 3.8. The transformation ratio reaches a maximum value at the time $t = 160t_0$ and it equals 4.3 (Fig. 1). The transformation ratio equals 5.9 at the time $t = 120t_0$ in the case of wakefield excitation in the plasma by a laser pulse with an intensity $b_0 = 4$ (Fig. 2). The bunch of accelerated electrons is formed after 160 laser periods (Fig.3) and destroyed after 280 laser periods. If an intensity of the laser pulse is $b_0 = 5$ then the transformation

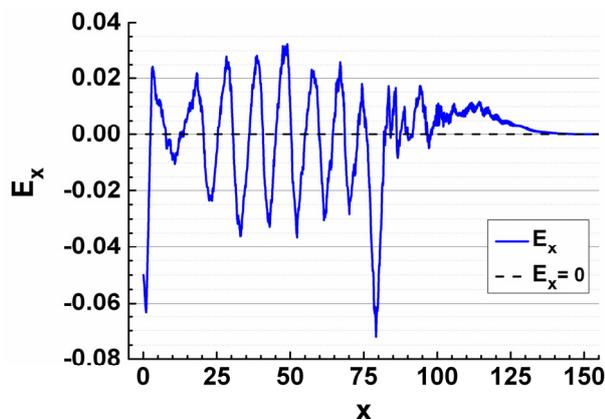


Fig.1. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse with intensity $b_0 = 3$ at the time $t = 160t_0$

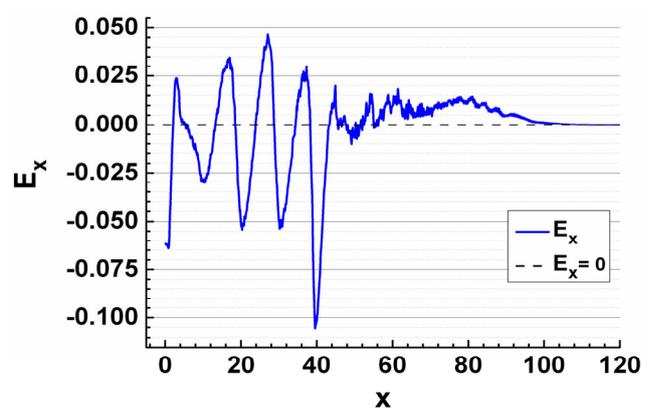


Fig.2. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse with intensity $b_0 = 4$ at the time $t = 120t_0$

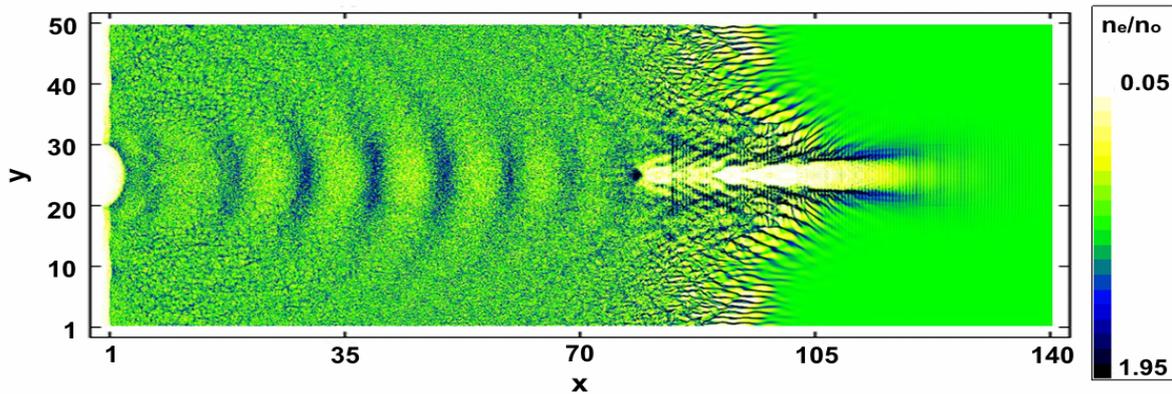


Fig.3. Wake perturbation of plasma electron density, excited by one laser pulse of low intensity $b_0 = 4$ at the time $t = 160t_0$

ratio reaches the value 6.26 at the time $t = 120t_0$ and the accelerated electron bunch, which was formed after 160 laser periods, is not destroyed up to $t = 300t_0$. When the plasma wakefield is excited by a laser pulse with an intensity $b_0 = 6$, the transformation ratio reaches a value 7 after 80 laser periods from the beginning of the interaction and is equal to 5.65 at the time $t = 120t_0$. In the case of wakefield excitation by the laser pulse with an intensity $b_0 = 7$ the transformation ratio is equal to 5.6 at the time $t = 80t_0$ and equals 6.3 after 120 laser periods (Fig.4). Also the formation of explicit bunch of accelerated electrons occurs after 160 laser periods for cases of laser pulses with an intensity $b_0 = 6$ and $b_0 = 7$ (Fig.5), at this time, the transformation ratios are equal to 3.4 and 5.2, respectively. The transformation ratio

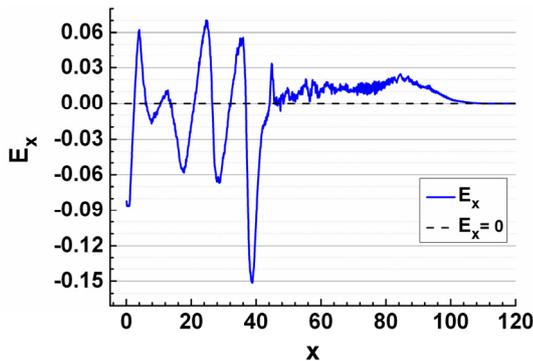


Fig.4. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse with intensity $b_0 = 7$ at the time $t = 120t_0$

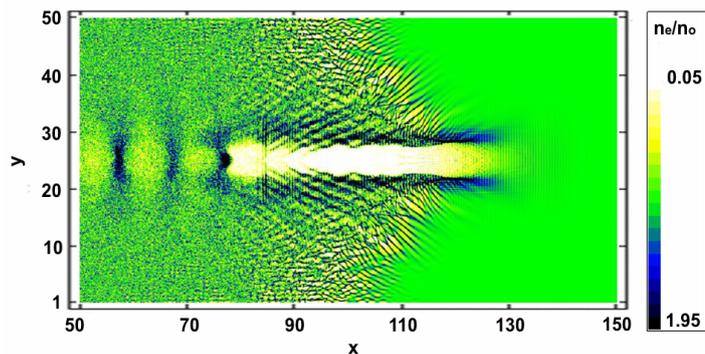


Fig.5. Wake perturbation of plasma electron density, excited by one laser pulse with intensity $b_0 = 7$ at the time $t = 160t_0$

equals 5.8 at the time $t = 80t_0$ and 7.4 at the time $t = 120t_0$ in the case of plasma wakefield excitation by a laser pulse with an intensity $b_0 = 8$. If the intensity of the laser pulse equals $b_0 = 9$ then the transformation ratio is equal to 6.2 after 80 laser periods and is equal to 7.9 after 120 laser periods. The transformation ratio reaches the value 7.6 at plasma wakefield excitation by the laser pulses with intensities $b_0 = 10$ (Fig.6) and $b_0 = 11$ (Fig.7). However, for these cases at the time of formation of the accelerated electron bunch ($t = 160t_0$) transformation ratio equals 4.4 and 5.5, correspondingly.

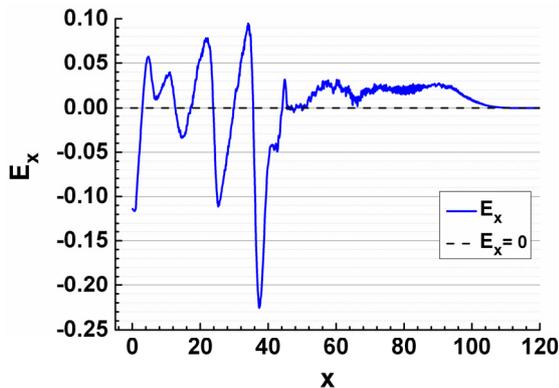


Fig.6. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse with intensity $b_0 = 10$ at the time $t = 120t_0$

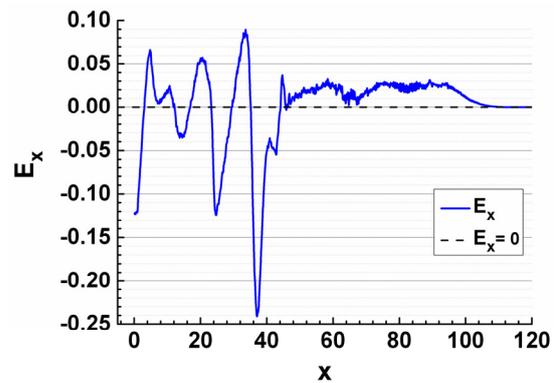


Fig.7. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse with intensity $b_0 = 11$ at the time $t = 120t_0$

Now we consider wakefield excitation by a laser pulse of large intensity $b_0 = 12$. The transformation ratio is equal to 6 after 80 laser periods from the beginning of the interaction and reaches the maximum value 9 at the time $t = 120t_0$ (Fig. 8). The accelerated electron bunch is formed after 160 laser periods (Fig. 9), and is not destroyed up to $t = 300t_0$ (Fig. 10).

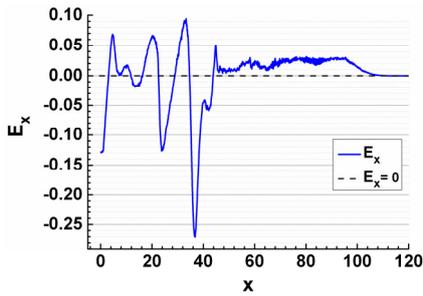


Fig.8. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse of large intensity $b_0 = 12$ at the time $t = 120t_0$

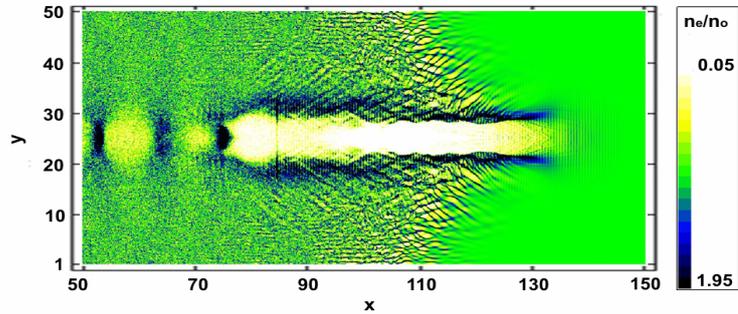


Fig.9. Wake perturbation of plasma electron density, excited by one laser pulse of large intensity $b_0 = 12$ at the time $t = 160t_0$

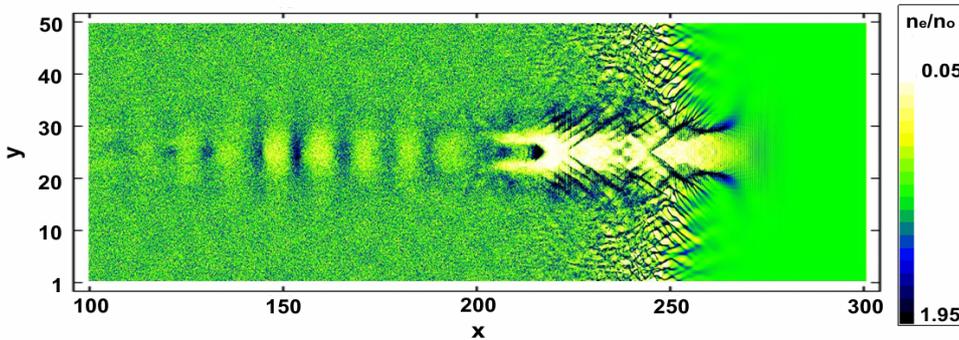


Fig.10. Wake perturbation of plasma electron density, excited by one laser pulse of large intensity $b_0 = 12$ at the time $t = 300t_0$

When the laser pulse of large intensity $b_0 = 21$ excites the wakefield in the plasma, the transformation ratio reaches the value 7.6 at the time $t = 120t_0$ (Fig. 11). In this case the formation of accelerated electron bunch occurs at the time $t = 180t_0$ (Fig. 12), in addition, we observe the formation of a sequence of quasi bunches of electrons (Fig. 13).

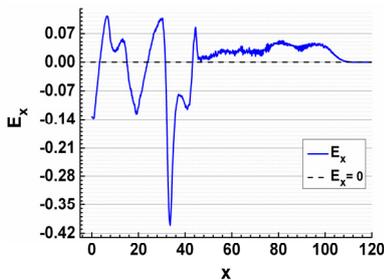


Fig.11. Longitudinal component of the wakefield E_x excited by one laser pulse of large intensity $b_0 = 21$ at the time $t = 120t_0$

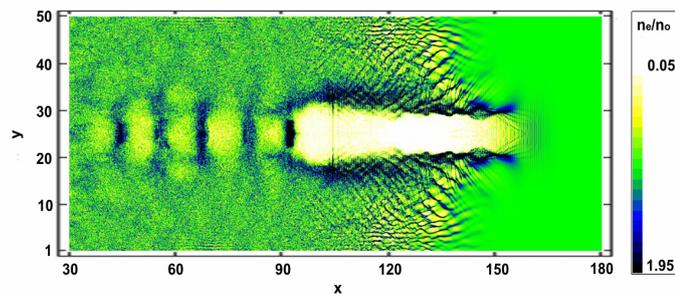


Fig.12. Wake perturbation of plasma electron density, excited by one laser pulse of large intensity $b_0 = 21$ at the time $t = 180t_0$

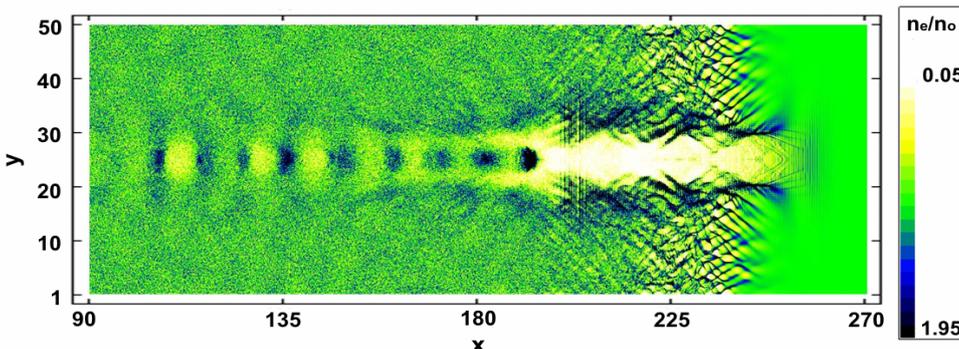


Fig.13. Wake perturbation of plasma electron density, excited by one laser pulse of large intensity $b_0 = 21$ at the time $t = 280t_0$

CONCLUSIONS

It is shown that for an asymmetric laser pulse distribution in which the pulse intensity rises gradually according to cosine from the front of the pulse toward the peak and then falls off sharply behind the peak, the transformation ratio can be much larger than two. The numerical simulation shows that, in order to reach the value of the transformation ratio larger than two, it is necessary that the length of the exciting pulse be greater than the plasma wavelength. In addition, the pulse radius must be much less than the pulse length. Finally, the numerical simulation of the laser plasma wakefield excitation indicates that for a given driving pulse, the bunch of accelerated electrons is formed.

ACKNOWLEDGEMENTS

The numerical simulation was performed by a modified version of the UMKA2D3V code [12 – 14]. We would like to thank the authors of the code UMKA2D3V for the possibility to numerically simulate by their code.

REFERENCES

1. Tajima T., Dawson J.M. Laser Electron Accelerator // *Physical Review Letters*. – 1979. – Vol. 43, Issue 4. – P. 267–270.
2. Esarey E., Sprangle P., Krall J., Ting A. Overview of Plasma-Based Accelerator Concepts // *IEEE Transactions on Plasma Science*. – 1996. – Vol. 24, Issue 2. – P. 252–288.
3. Hooker S. M. Developments in laser-driven plasma accelerators // *Nature Photonics*. – 2013. – Vol. 7, Issue 10. – P. 775–782.
4. Malka V. Laser plasma accelerators // *Physics of Plasmas*. – 2012. – Vol. 19, Issue 5. – P. 055501– 055700.
5. Corde S., Phuoc K.Ta, Lambert G. et al. Femtosecond x rays from laser-plasma accelerators // *Reviews of Modern Physics*. – 2013. – Vol. 85, Issue 1. – P. 1–58.
6. Kim H.T., Pae K.H., Cha H.J. et.al. Enhancement of electron energy to the multi-GeV regime by a dual-stage laser-wakefield accelerator pumped by petawatt laser pulses // *Physical Review Letters*. – 2013. – Vol. 111, Issue 16. – P. 165002.
7. Afhami S., Eslami E. Injection and acceleration of electron bunch in a plasma wakefield produced by a chirped laser pulse // *Physics of Plasmas*. – 2014. – Vol. 21, Issue 6. – P. 063108.
8. Mori W.B., Decker C.D., Hinkel D.E., Katsouleas T. Raman forward scattering of short-pulse high-intensity lasers // *Physical Review Letters*. – 1994. – Vol. 72, Issue 10. – P. 1482–1485.
9. Ruth R.D., Chao A.W., Morton P.L., Wilson P.B. A plasma wake field accelerator // *Particle Accelerators*. – 1985. – Vol. 17, Issue 3-4. – P. 171–179.
10. Chen P., Dawson J.M., Huff R.W., Katsouleas T. Acceleration of Electrons by the Interaction of a Bunched Electron Beam with a Plasma // *Physical Review Letters*. – 1985. – Vol. 54, Issue 7. – P.693–696.
11. Katsouleas T. Physical mechanisms in the plasma wake-field accelerator // *Physical Review A*. – 1986. – Vol. 33, Issue 3. – P. 2056–2064.
12. Liseykina T.V., Bychenkov V.Yu., Dudnikova G.I., Pegoraro F. Laser-triggered ion acceleration at moderate intensity and pulse duration // *Applied Physics B*. – 2005. – Vol. 81, Issue 4. – P. 537–542.
13. Bulanov S.V., Vshivkov V.A., Dudnikova G.I. et al. Laser acceleration of charged particles in inhomogeneous plasmas. I // *Plasma Physics Reports*. – 1997. – Vol. 23, Issue 4. – P. 259–269.
14. Dudnikova G.I., Bychenkov V.Yu., Maksimchuk A. et al. Electron acceleration by few-cycle laser pulses with single-wavelength spot size // *Physical Review E*. – 2003. – Vol. 67. – P. 026416 (1–7).

PACS: 28.50Ma, 61.20ja

DEFINITION OF CONTRIBUTION AND TYPE OF PARTICLES IN MIXED SIGNAL DETECTORS

V.N. Dubina

V.N. Karazin Kharkov National University, Department of Physics and Technology

31 Kurchatov av., Kharkov, 61108, Ukraine

E-mail: dubina@pht.univer.kharkov.ua

Received September 25, 2014

Procedure of particle type definition in mixed signal detectors was developed by the results of the device operation simulation and by the results of experimental processing of telemetry data arriving from the orbit. The procedure is based on calculation justification of predominately electron signal in the electron detection channel, lack of electron and gamma signals in the mode of measuring protons in the energy range of 7.4-10.0 MeV, possibility to study the device operation in the range of an authentic proton flux when an electronic component is absent. The latter case allowed to confirm record of bremsstrahlung in the mode of high energy particle detection using the device when the satellite passed through the Brazilian magnetic anomaly (BMA). Basing on the characteristic properties of the electron and proton channels, an attempt was made to define the type of particles in the background fluxes. The simulation was performed using GEANT 4.7 package intended for designing nuclear processes of high-energy charged particles passage through the satellite spectrometer-telescope STEP-F. The programs were developed using C++ and they work under control of OS RadHat LINUX 6.2.

KEY WORDS: recording channel, silicon matrix, radiation belt, background fluxes, flux correlation, time/space distribution

ВИЗНАЧЕННЯ ВНЕСКУ ТА ТИПУ ЧАСТОК У ДЕТЕКТОРАХ ЗІ ЗМІШАНИМИ СИГНАЛАМИ

В.М. Дубина

Харківський національний університет ім. В.Н.Каразіна, ФТФ

пр. Курчатова, 31, Харків, 61108, Україна

Розроблена методика визначення типу часток у детекторах зі змішаними сигналами з результатів моделювання роботи прибору та даних експериментальної обробки телеметричної інформації отриманою з орбіти. В основу методу покладено розрахункове обґрунтування переважно електронного сигналу з каналу електронного детектування, брак електронного та гама-сигналу у режимі вимірювання протонів у діапазоні енергій 7.4-10.0 MeV, можливість досліджувати роботу обладнання у області достовірного потоку протонів та одночасно відсутністю електронної компоненти. Останній випадок дозволив підтвердити реєстрацію гальмового випромінювання у режимі детектування приладом часток високої енергії при проходженні супутником Бразильської магнітної аномалії. Виходячи з особливості роботи електронного та протонного каналів, зроблена спроба визначення типу часток у фонових потоках. Програми моделювання роботи приладу STEP-F розроблені на мові C++ та працюють на платформі ОС Red Hat LINUX 6.2 FEDORA.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: канали реєстрації, кремнієва матриця, радіаційний пояс, фонові потоки, кореляція потоків, часовий/просторовий розподіл

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВКЛАДА И ТИПА ЧАСТИЦ В ДЕТЕКТОРАХ СО СМЕШАННЫМИ СИГНАЛАМИ

В.Н. Дубина

Харьковский национальный университет им. В.Н.Каразина, ФТФ

пр. Курчатова, 31, Харьков, 61108, Украина

Разработана методика определения типа частиц в детекторах со смешанным сигналом по результатам моделирования работы прибора и данным экспериментальной обработки телеметрической информации поступавшей с орбиты. В основе методики лежит расчётное обоснование преимущественно электронного сигнала по каналу электронного детектирования, отсутствие электронного и гамма сигнала в режиме измерения протонов в диапазоне энергий 7.4-10.0 МэВ, возможность исследовать работу прибора в области достоверного потока протонов при одновременном отсутствии электронной компоненты. Последний случай позволил подтвердить регистрацию тормозного излучения в режиме детектирования прибором частиц высокой энергии при прохождении спутником Бразильской магнитной аномалии. Исходя из особенностей работы электронного и протонного каналов, сделана попытка определения типа частиц в фоновых потоках. Моделирование проводилось с использованием пакета разработчика GEANT 4.7 ядерно-физических процессов прохождения заряженных частиц высокой энергии через спутниковый спектрометр-телескоп СТЭП-Ф. Программы разработаны на языке C++ и работают под управлением ОС RadHat LINUX 6.2.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: каналы регистрации, кремниевая матрица, радиационный пояс, фоновые потоки, корреляция потоков, временное/пространственное распределение.

The scientific experiment with satellite telescope of electrons and protons STEP-F, as a part of the "CORONA-PHOTON" complex, was carried out in accordance with the agreement between the V.N. Karazin Kharkov National University and the National Research Nuclear University (MIPhI).

The object of the experiment was to study the energy spectra dynamics and pitch-angle distribution of high energy electrons, protons and alpha-particles of the Earth radiation belts during magnetospheric storms and substorms as well as exposure of the Earth magnetosphere to the high speed flows of sun wind.

The device consists of a detector unit (STEP-FD) installed outside the hermetic compartment of the spacecraft and a digital information processing unit STEP-FE placed inside the hermetic compartment.

The telescopic system of the detection head in the STEP-FD detector unit consists of two identical silicon position-sensitive matrix detectors D1 and D2 (each of dimensions 45×45 mm and thickness 380 μm) placed in series, and two scintillation detectors based on Cs(Tl) monocrystals “scanned” by photodiodes of large area (in D3 detector) and by photomultiplier (in D4 detector) [1,2].

The aim of this work was to achieve the correspondence between calculated and measured data by modeling possible spectrum distribution of primary particles.

The simulation was performed using GEANT 4.7 package intended for designing nuclear processes of high-energy charged particles passage through the satellite spectrometer-telescope STEP-F. The programs were developed using C++ and they work under control of OS RadHat LINUX 6.2 [3].

SIMULATION OF MIXED FLUX RECORDING WITH THE STEP-F DEVICE

When studying the experimental results of STEP-F device operation, some special model calculations were made to determine possible contribution of protons to an electron signal.

Possibility to record ions in the recording channel with 0.18-0.51 MeV electrons (hereinafter – D1e) is determined by energy losses of protons (the lightest ions) with energy from 3.5 MeV. The minimum energy of the protons recorded in the first positional-sensitive matrix, is determined by their maximum path in an aluminum screen with thickness of 105 microns. As soon as a particle with near-threshold energy can leave in D1 (hereinafter – the first silicon positional-sensitive matrix detector) rather small energy, there is a probability to record protons with such energy in channel D1e.

With the aim to estimate the potential contribution of protons in the electron recording channel the absorption probability of proton sub-threshold energy in D1 was calculated. For the proton recording channel calculation was fulfilled in the energy range of 3.7-7.4 MeV, threshold of registration - 500 keV. The calculations were made in the energy range of 3.5-3.7 MeV (Fig.1a, Tab.1).

For the proton energy of 3.68 MeV, the minimum absorbed energy in D1 was 600 keV. Basing on the energy range of protons of 3.51-3.67 MeV which can be recorded in the electron channel (Tab.1), the proton flux in channel D1e, according to the calculations carried out in approximation of the uniform spectral distribution of a proton flux by energies can make 4.3 % from the proton flux recorded in channel D1p. In approximation of exponential distribution of protons by energies (Fig.1b), the proton component contribution to the electron signal can reach 12 % of the proton flux recorded in channel D1p.

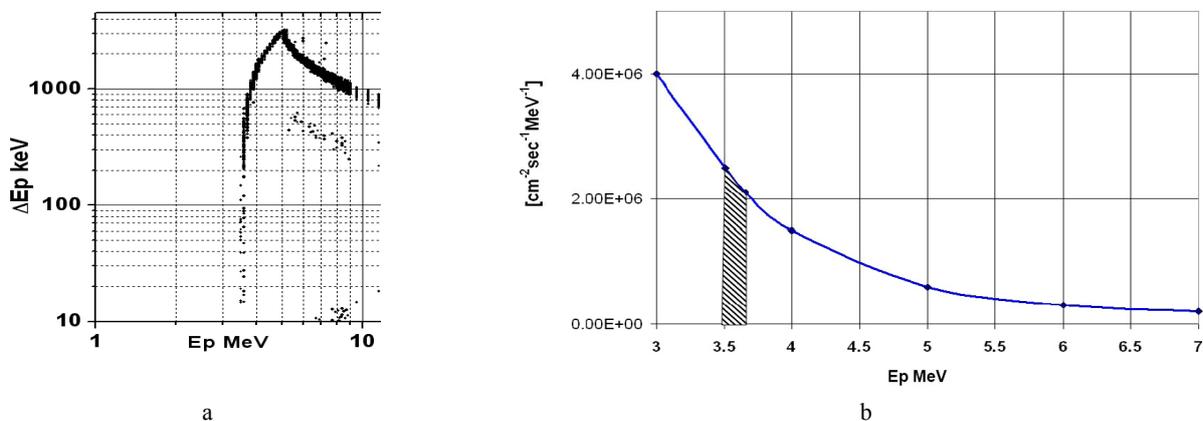


Fig.1. Effects of simulation of the STEP-F device operation with protons in D1

- a – Dependence of the absorbed energy in D1 on the primary energy of the proton (threshold energy = 3.5 MeV);
- b – fragment of an exponential spectral distribution of protons [4].

Accordingly, the maximum proton contribution of full signal in channel D1e can make 12% at low level of the electron signal compared with the proton flux. The correlation with the experimental data will be demonstrated below.

Table 1.

Distribution of potential absorption in the first silicon matrix at energy less than 500 keV.

E_p MeV	3.51	3.58	3.59	3.60	3.61	3.65	3.67
Recording probability in D1e	100 %	100 %	90 %	80 %	70 %	50 %	40 %

Preliminary analysis of the experimental data on the electron fluxes confirms the calculation results [2]. In its turn, after the completion of the analysis of the entire available experimental data array on the protons spectral distribution, the calculated values of the protons contribution to the electron channel will be specified.

Low energy of the device threshold in the mode of recording electrons can result in recording X-rays and gamma-quanta. One of the X-ray sources effecting on the device are electron fluxes with energies of up to 170 keV. Electrons in

this energy range do not get to the detector, being absorbed by the input aluminum window with thickness of 105 μm and by collimator of the STEP-F device. The value of this flux can exceed the values of the electron flux in the energy range that is recorded by D1e by almost a factor of ten (see experimental part of article).

Model calculations of bremsstrahlung generation in the protective window, and in the STEP-F device input collimator, as well as this bremsstrahlung record by silicon matrixes were carried out. Fig.2 presents spectral distribution of gamma-quanta getting to the first detecting matrix (Fig.2a) and to the second silicon positional-sensitive matrix (hereinafter – D2) (Fig.2b).

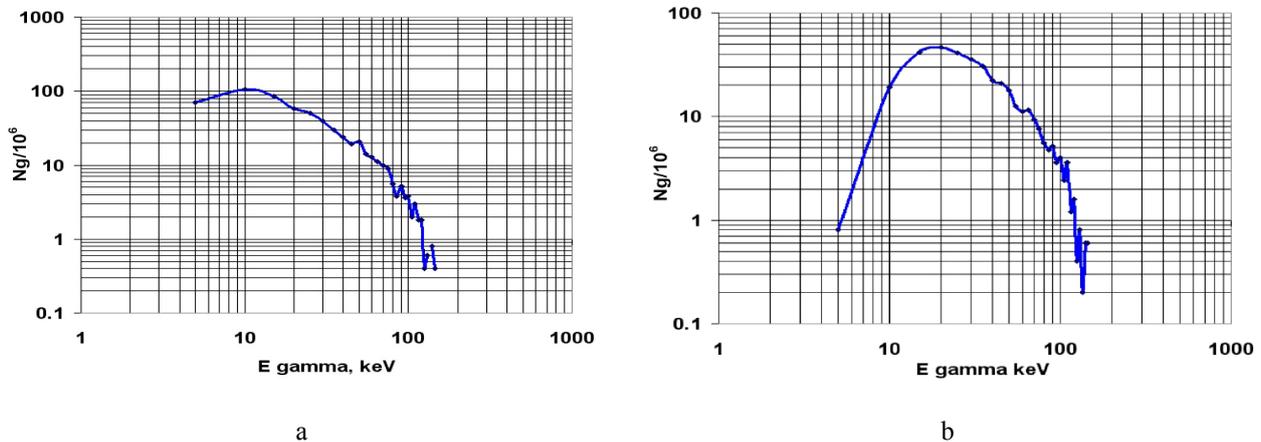


Fig. 2. Bremsstrahlung spectra getting on D1 – a, and D2 – b, when the device is irradiated with monochromatic electron flux with energy of 150 keV for electron beam $N_e=10^6$

As Fig.2 shows, the bremsstrahlung spectrum getting to D1 is essentially softer than that getting to D2, so its intensity is also more essential. Calculations showed that besides the secondary gamma rays getting in D1, about 2% of the primary electrons with energy of up to 150 keV get there too, what can also make its contribution to D1 detector reading, at essential values of fluxes in the range of low energies of electrons. As to the detecting matrix D2, electrons in this range of energies virtually do not get there. The results of the device operation simulation have also shown that the signal from the gamma-quanta, recorded in D1, is nearly by a factor of a hundred stronger than the signal in D2. So irradiation of the detector silicon matrixes with gamma-quanta from the input window transmits a signal practically only to D1. Radiation yield from the aluminum foil, as well as from the input collimator of STEP-F device for the primary electron energy of 150 keV was $2.028e^{-3}$ per one electron [5].

In case of the electron flux excess in this energy range by a factor of a hundred compared to the electron flux which is recorded in the D1e channel, the extra particle flux can rise to 20% due to bremsstrahlung. Model calculations showed that in the energy range of gamma rays from 50 to 200 keV at bremsstrahlung generation on the side of the input window, the Compton scattering signal in D1 can add up to 1.5% of the total particles flux recorded by the detector. The bremsstrahlung generated by the electron flux incident on the device on the side of the input window and the collimator can provide an effective contribution to the reading of D1 within the limits of 1% over the entire energy range.

To estimate the share of the electron component of the particle flux recorded in the mixed radiation channel $p(E_p, 7-7.4 \text{ MeV}) + e(E_e=0.55-0.95 \text{ MeV})$, hereinafter D1p, simulation of the STEP-F device response to the real electron fluxes obtained under the CORONAS-PHOTON experiment was carried out.

The model is developed in the approximation of the continuity of spectral distribution of the primary electron flux and isotropic nature of the primary electron angular distribution.

Before calculating the integral components of the recorded flux for each energy of spectral distribution of the primary electrons recorded by the detecting matrixes, calculations of the electrons absorption probability distribution between the matrix detectors D1 and D2 when irradiating the STEP-F device by electrons both at normal angle of incidence to the surface of the protective foil and when irradiating the device by electron flux with isotropic angular distribution were performed (Fig.3). Figure 3a presents the calculation results for the electron detection efficiency in channels D1e and D1p both for the case of normal incidence of the primary electron flux, and for the case of isotropic distribution of that in the range of angles corresponding to the STEP-F device apertures. The dependence of the number of interacted electrons on their energy loss in the silicon matrix was calculated for each primary electron energy (Fig.3b). The calculation was performed as follows: for each electron energy a flux with known angular distribution was simulated and in accordance with the pre-selected power range, the events with the same energy loss were summed. To calculate the detection efficiency in the channel D1p the obtained curves were integrated, starting with the threshold energy for D1p channel (Fig.3b). Detection efficiency in D1e channel was calculated as the ratio of the particle flux recorded in D1 and not caught by the second silicon matrix to the particle flux incident on the protective foil.

When simulating electron angular distribution corresponding to STEP-F device aperture essential decrease in efficiency of low energy electron recording was observed as compared to simulation of normal angle of incidence, but

in this case the absorption probability of electrons with energies exceeding the range of the electron detection in channel D1e – 0.18-0.51 MeV increased (Fig.3). Recording of electrons in channel D1p is due to the fact that for the high-energy electrons a certain probability of their complete absorption always exists. As is evident from Fig.3, when electrons are incident at wide angle the absorption probability for high-energy electrons also increases (Fig.3a,b).

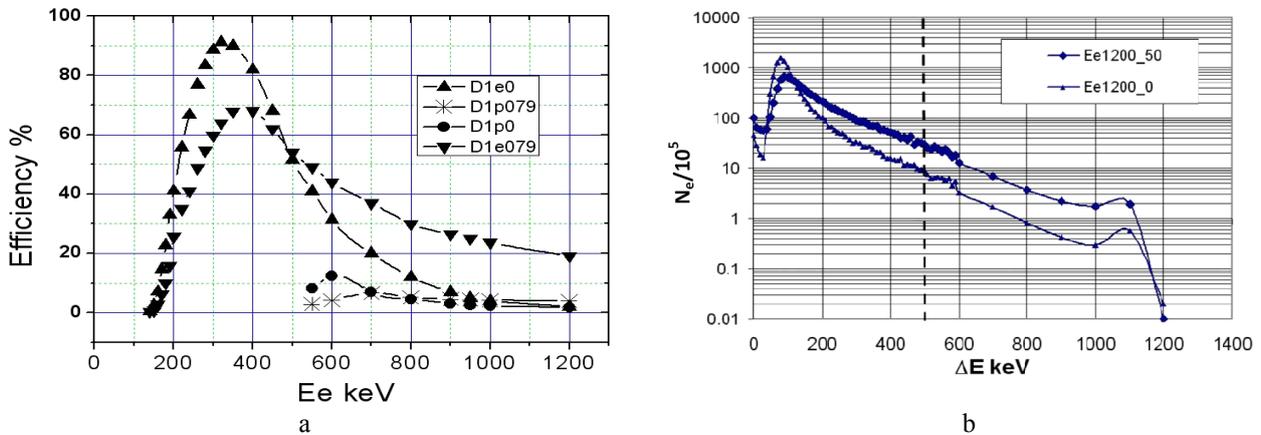


Fig.3. Sensitivity of D1 detector when recording primary electron flux in D1e and D1p channels

a: ▲ – D1e at normal angle of incidence; ✕ – at irradiation angles in the range of 0 - 79 °; ● and ▼ – the same for D1p channel.
b: ▲ – distribution of energy loss of monochromatic electron flux in D1 detector of SETEP-F device, $N_e = 10^5$, $E_e = 1.2$ MeV at normal angle of incidence; ◆ – at angle of 50 °; vertical dashed line – threshold of D1p recording channel.

Calculations have shown that the most part of the flux in the energy range recorded in channel D1p, is recorded in the channel for electrons with energy ranging from 0.35 to 0.95 MeV, hereinafter – D2e (Tab.1). It should be noted that electrons of this energy range are also recorded in channel D1e (Fig.3a), but as is clear from the Figure, low-energy electrons predominate considerably in the recording channel D1e, what makes it difficult to obtain a stable correlation between the fluxes in channels D1e and D1p despite their identical geometric factors.

Table 2.

Probability of electron recording in channels D1p and D2e

Primary electron energy keV	Recording efficiency in D1p channel %	Recording efficiency in D1p channel %
550	2.8	48
700	6.6	81
800	5.2	89
900	4.5	79
1200	3.9	38

Possible distinction of the electron primary flux distribution in different recording channels can be both spectral distribution of a primary flux, and the character of primary angular distribution. Simulation of hitting of the electron fluxes to the device recording surface at different angles was carried out. For example, when irradiating the device with the wide-angle beam of 53°, the ratio of recorded fluxes D1p/D2e for $E_e = 1200$ keV increased twice as compared to the data obtained at isotropic irradiation of the STEP-F device.

Calculation of primary electron spectral distribution was simulated using the following power function:

$$N(E) = \left(\frac{E_{\min}}{E} \right)^b, \tag{1}$$

where parameter $b > 0$, E_{\min} – the minimal energy in the spectrum.

Such algorithmization well corresponds to the characteristic distribution of electrons incident on satellite (see the part of comparison with another data sources). Parameter b was chosen so as to get real relation between the fluxes of electrons detected by the detecting silicon matrix (hereinafter referred to as D1 and D2) for the whole analyzable period of the satellite operation.

The electron flux recorded by each matrix was calculated as the integral of the product of spectral distribution of the electron primary flux and electron absorption probabilities in each recording channel within the whole energy range of each matrix allowing for the isotropic angular distribution (Fig.4).

Variation of spectral distribution using power function showed no significant spectral dependence for the electron flux absorbed in D1p channel. Part of the electron flux recorded in the mixed channel (D1p) ranged from 4% to 5.5% of the electron flux detected in D2e channel, at changing of the flux ratio D1e/D2e from 9 to 2, what corresponds to the variation of parameter b from 4 to 2 ((1) and Fig.4).

Variation of angular distributions (predominance of wide or lack of small angles) has shown potential growth of ratio for fluxes D1p/D2e irrespective of the dependence on the primary spectral distribution of the electron flux.

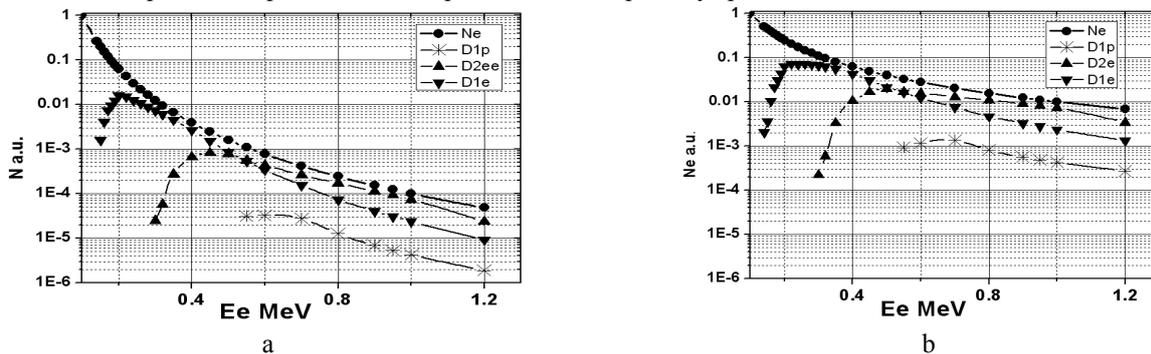


Fig.4. Simulation of recorded flux distribution in electron recording channels

● – a primary flux; ▼ – the flux recorded in D1e; ▲ – the flux recorded in D2e; * – the flux recorded in channel D1p.
In a – parameter b = 4; In b – parameter b = 2.

PROTON COMPONENT SELECTION IN THE MIXED RECORDING CHANNEL D1p DATA FROM STEP-F DEVICE

At "Coronas-photon" satellite passage through radiation belts, spatial distributions of the fluxes recorded in channels D2e and D1p, practically coincide, but the intensity recorded in channel D1p, is essentially lower than that in D2e (Fig.5).

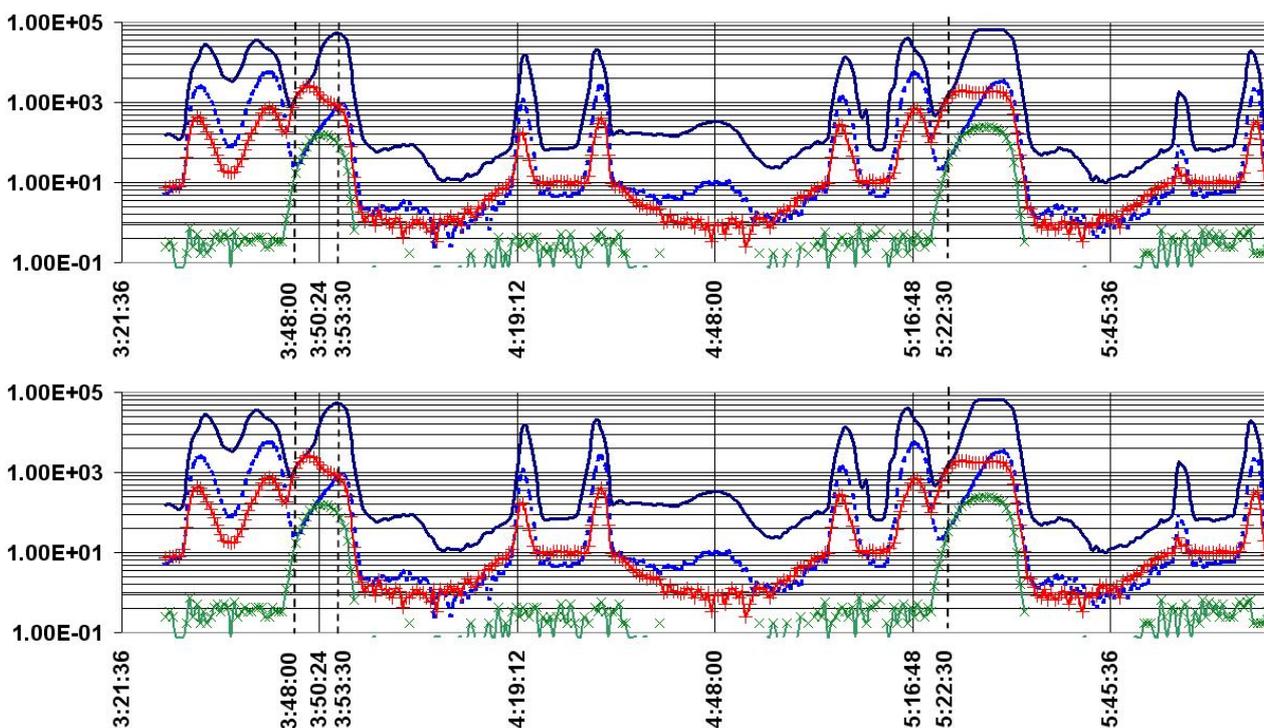


Fig.5. Temporal (spatial) distribution of particle fluxes recorded in channels D1e – the upper curve, D2e – the dashed curve, D1p – mark +, D2p – mark x.

Figure 5 shows how spatial distribution of the fluxes recorded by electron channels recur in D1p, an exception is BMA area in which, at least, in its peripheral part, a marked discrepancy between indications of proton and electron channels is observed (at 3:50:24).

Electron fluxes, when penetrating through detecting matrices, are distributed in recording channels according to the electrons path range, and in case of the mixed recording channel D1p they are selected by the level of the absorbed energy threshold. However, due to the probabilistic character of electron energy loss, as well as high degree of angular scattering dispersion, electrons of the same energy can be recorded in all the channels under study (Fig.4).

As regards to the recording channel D1e, high energies are recorded not due to complete absorption of electrons in D1 (in this case, they are recorded in D1p channel), but due to their missing in the second matrix. Most part of the flux, which can enter the channel D1p, is recorded in D2e channel (Fig.4).

To study correlation of fluxes recorded in different channels and flux detectors, relations between D2e/D1p and D1e/D2e have been analyzed (Fig.6a and 6b, respectively).

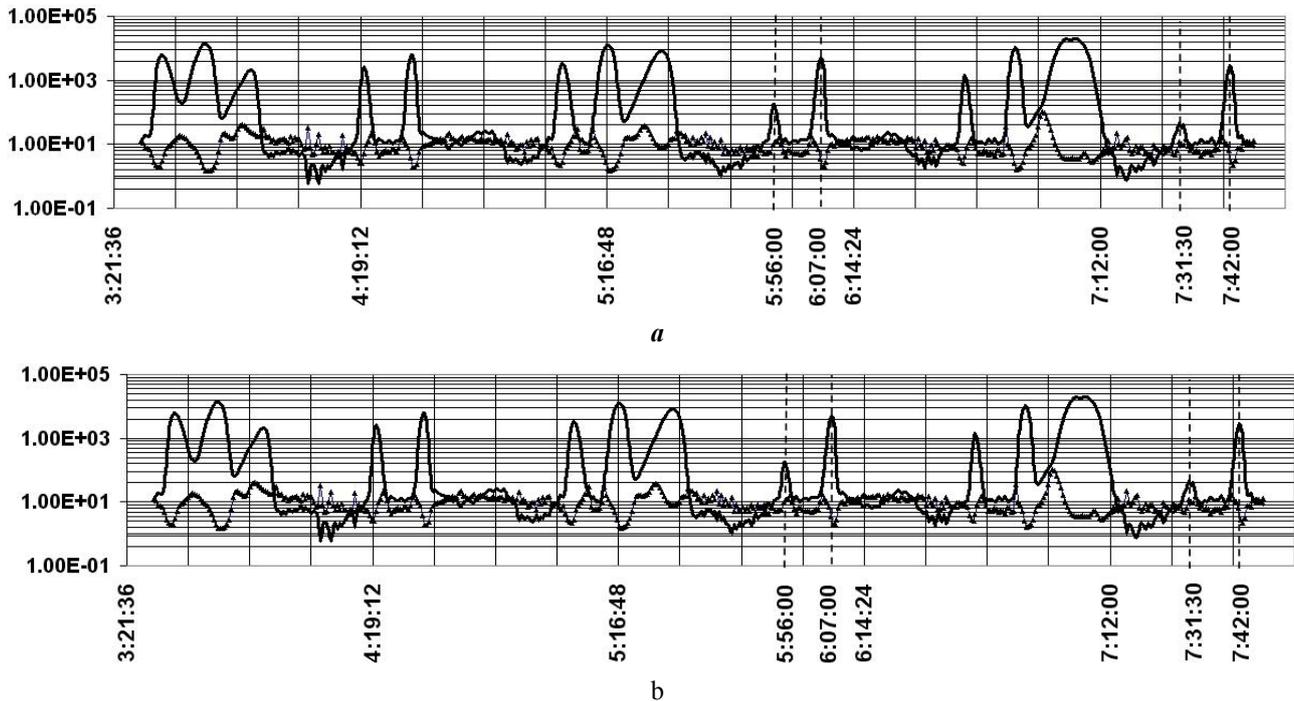


Fig.6. Correlation of particles fluxes recorded in different channels

- a: In channels D1p and D2e, D2e – bold curve; relation D2e/D1p – triangle markers;
- b: In channels D1e and D2e, D2e – bold curve, ratio D1e/D2e – triangle markers.

Presence of the expressed maximum in the areas corresponding to passage through the radiation belts is characteristic for curve D2e/D1p. This maximum correlates with D2e/D1p ratio which is about 20. In the model the flux recorded in channel D1p makes 4-5 % of the flux recorded in channel D2e. The model calculations have shown that this value depends on the threshold of recording in the mixed channel (D1p).

At 3:48:00 and 5:22:30 minimum of curve D2e/D1p is observed what denotes practically complete absence of electrons recorded in channel D2e in these areas. Thus, it can be assumed that a proton flux detected by the mixed recording channel (D1p) prevails here, what is also confirmed by presence of fluxes detected in D2p channel at these moments (Fig.5).

In the area of background fluxes, "between" the radiation belts (in Fig.6 it is presented by sample points of time 4:26:30, 6:46:00, etc.) equality of fluxes recorded in channels D1p and D2e is observed. According to our calculations, in the areas of electron fluxes only up to 5% of electrons with energy above the threshold of those recorded in channel D2e can be absorbed in D1p. Hence 95 % of the flux recorded in the area of background fluxes in channel D1p with energy above threshold must be of no electronic nature and have the absorbed energy above that peak which electron leaves in the detector matrices, i.e., up to 5MeV [3]. The calculations and analysis allow affirming that the background fluxes are of mixed nature. As it will be shown below, similar data on background fluxes have been obtained in some other researches.

In the area of two "neighboring" crossings of the radiation belts, at descending and ascending orbit, at 5:56:00 and 6:07:00, considerable difference in the ratio of the fluxes D2e/D1p is observed, i.e., 9.68 and 21.2, respectively. And with an absolute reduction of the flux in channel D1e (see. Fig.6-b), the ratio D1e/D2e increased from 3 to 10. As model calculations on electron fluxes distribution between proton and electron channels, in the wide range of spectral distribution of primary electrons, have shown, such a change in ratio of indications for D1p and D2e is impossible for the case of isotropic angular distribution. Model studies of the recorded fluxes distributions have shown that this might happen not due to sharp changes in the electron spectral distribution but due to the predominance of angular distribution of the primary flux of electrons with wide angles (appropriate calculations are presented in section "Simulation"). In such a way a reference criterion for determining the degree of isotropy of the initial radiation flux was obtained; the effect of interaction between the device and the directed flux not getting normally on the sensitive surface of the detector was confirmed.

Even greater decline in the ratio D2e/D1p (Fig.6a, at 7:31:30; 7:42:00) is accounted not only for the predominance of wide angles in the primary flux, but also for the presence of the proton component in the mixed flux recorded in D1p channel comparable with electrons, as it was mentioned above.

Ratio D1p/D2e in the central part of BMA (at 7:06:00) shows prevalence of electron fluxes in the energy range of 0.35-0.95 MeV over proton fluxes in this area of space. Nevertheless, unlike the area of crossing radiation belts by the satellite, contribution of electrons to the proton channel is not dominant. As is clear from Fig.6a (at 6:52:00 and 7:06:00) the electron flux increase in channel D2e in the BMA area more than twice, compared to that in the RB crossing area, was accompanied by increase of the flux recorded in the channel D1p by more than 5 times. According to our model calculations, it could not happen exclusively due to the electron component detected by the mixed flux channel.

As it was noted earlier, the relative growth of electron component of the mixed signal in channel D1p was observed at prevalence of wide angles in the area of the flux detection by STEP-F device, and was accompanied by decrease in the integrated flux recorded by the device. In the central area of BMA, at high intensity, anisotropy of radiation fluxes, in particular lack of normal angles when radiation hits the device input window, is improbable.

Proceeding from the assumption of isotropic angular distribution of particles hitting the STEP-F device in the area of BMA, when using model calculations of fluxes distribution in channels D1p and D2e, we obtained the following distribution mode of the flux proton component recorded by the mixed channel D1p (see Fig.7):

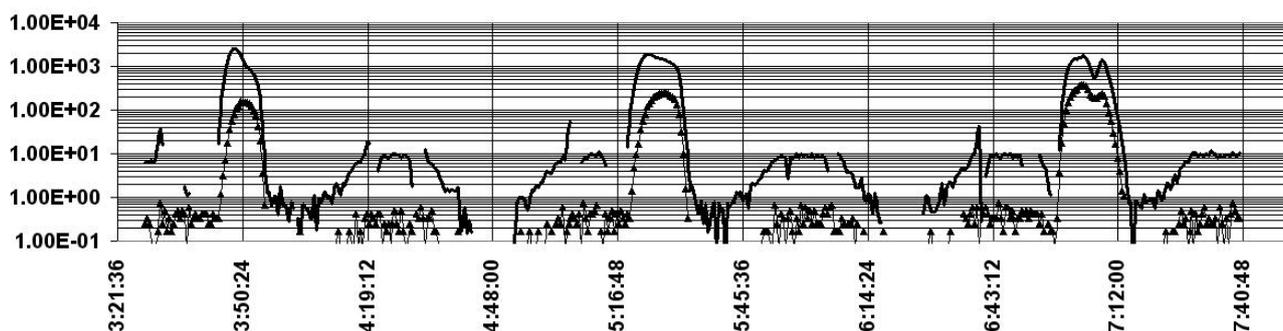


Fig.7. Spatial and temporal distribution of protons according to the data of D1p (bold line) and D2p (triangle marker) channels.

The developed model has allowed analyzing the relationship between electron fluxes recorded in different channels. An attempt was made to differentiate angular and spectral characteristics of the electron fluxes. Use of the developed model makes it possible to restore spectra both proton, and electron spectra of primary fluxes hitting the STEP-F device.

COMPARISON OF DATA FROM DETECTING MATRICES OF STEP-F DEVICE IN THE AREA OF BACKGROUND FLUXES WITH THOSE OBTAINED IN OTHER RESEARCHES

In the area of the radiation belts crossing the electron fluxes are usually much slower as to the count rate than in the area of BMA (Fig.5,6), but they are accompanied by low-intensity, but spatially extended fluxes of particles. Channel that do not records electrons (D2p, Fig.5,7) reproduce this distribution.

First of all attention should be paid to the fluxes recorded in channels D2e and D1p (Fig.5). In the area of background fluxes, the latter ones recorded in channels D2e and D1p, have practically the same intensity (Fig.5). As it was shown above, the electron part of the flux in the mixed channel D1p should be considerably lower, more than five times than the flux recorded in channel D2e. The equality of the fluxes recorded in channels D1p and D2e, also occurs in some areas of BMA when electron flux recorded in channel D2e and even in D1e, is of the same value as the flux, recorded by the mixed recording channel D1p (Fig.6, time points 3:52:00, 5:26:00).

According to the simulation of STEP-F device operation equality of the particle fluxes recorded in channels D2e and D1p may indicate nothing but different nature of these particles.

Localization of equal fluxes of particles with different energies in one area of magnetosphere is possible only in case of different types of these particles (Fig.8)

Figure 9 presents the data from the satellite "Meteor-M # 1" [7], and Fig.10 from the device "Electron-M-Peska" which was also used in the "Coronas-photon" experiment [8]. Mixed nature of the background fluxes is proved by the results of similar experiments with "Coronas-photon" using "Electron-M-Peska" device [8] recording both the electron component of the flux in the energy range of 0.2-1MeV, and the proton component in the energy range of 4-16 MeV (Fig.9).

Distribution of electrons in the energy range of 100-300 keV and protons in the energy range of 0.8 -1 MeV marked by triangle, electron distribution with energy of more then 300 keV, marked by circle, and proton distribution with energy more then 8 MeV (marked by square) are presented in Fig.9.

The results received with "Electron-M-Peska" device working on the orbit at the same time and under the same conditions as the STEP-F device are presented in Fig.10, where electron distribution is marked as "e" and proton distribution was marked as "p". As the figure shows the number of high energy electrons (more then 1 MeV) is significantly less then that of protons in the energy range of 4-16 MeV. But electron flows with energy more then

200 keV significantly stronger than those of protons for any energy, especially under radiation belt crossing. For us it is important that proton were registered during the whole process of measuring. The same results were obtained when modeling and processing the STEP-F data (see Fig.7).

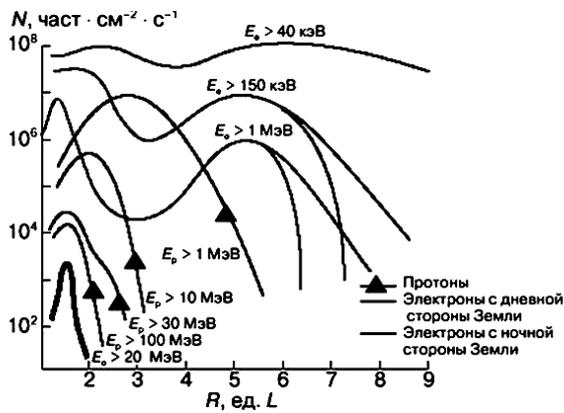


Fig.8. Spectral distribution of particles in the area of magnetosphere [6]

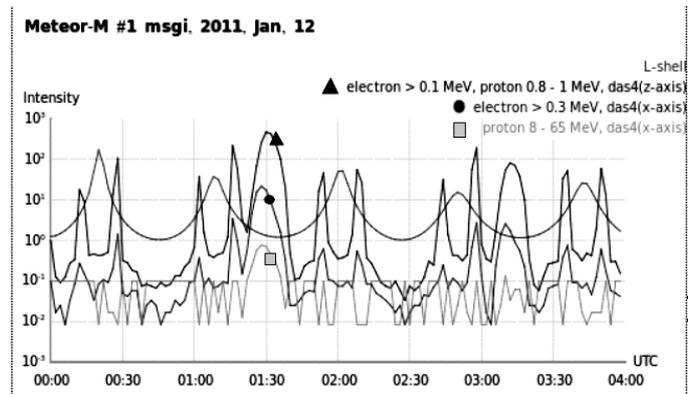


Fig.9. Variations of electron fluxes with energy of 0.1-0.3 MeV and proton fluxes with energy of 8-65 MeV in the period of UTC making 4 hours on January 12, 2011, according to the data obtained from "Meteor 3M" satellite.

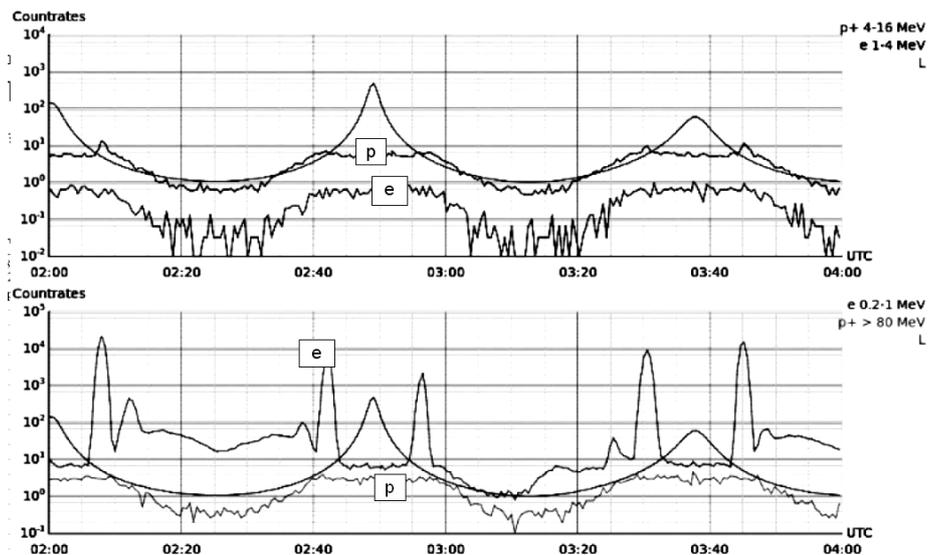


Fig.10. Variations of electron fluxes with energy of 0.2-4 MeV and protons fluxes with energy 5-16 MeV and above 80 MeV in the period of UTC making 2 hours on July 6, 2009 received on "Electron-M-Peska".

In the course of all the loops "Meteor-M # 1" recorded protons in the energy range of 8 - 65 MeV, not only in the BMA area (see. as example, Figure 9, UTC 1:20 - 1:35), but also in the area of background fluxes, as well as electrons in the energy range of > 0.3MeV.

CONCLUSION

Presence of areas with spatially separated electron and proton fluxes in the part of magnetosphere under study allows to analyze the mechanism of recording of the mixed flux in channel D1p.

The developed computer model of electron flux recording by the device allowed to define distribution principle regularity for electrons with the same energy between different channels designed for recording particles.

When measuring proton fluxes, one may define the electron component contribution to signal D1p by electron spectral distribution law, and can be estimated and calculated for concrete magnetospheric and other conditions.

When the proton fluxes are absent the channel D1p records electron component of the flux, its high-energy part, when the electron with its range of path exceeding the value of the silicon matrix thickness, still leaves all its energy in D1 channel. The electrons are recorded by the proton channel both due to the wide angle of their income, and due to the wide scale of the electron energy absorption probabilities (Fig.3b).

Possibility to differentiate the proton and electron fluxes when processing the experimental data would allow

analyzing the spectral distribution law for electrons and protons.

The detector channels which do not record the electron component of particle flux, as well as relation of the fluxes recorded in D2e and D1p would allow detecting presence of ions in the background fluxes for certain.

The author thanks Ph.D. A.V. Dudnik, for the presented STEP-F device parameters and the primary data obtained through the use of CORONAS-PHOTON satellite.

REFERENCES

1. Dubina V.N. Registracija tormoznogo izlucheniya priborom STEP-F v oblasti Brazilskoj magnitnoj anomalii // The Journal of Kharkiv National University, physical series "Nuclei, Particles, Fields". - 2011. - Vyp 4/52. - P.63-72.
2. Dudnik O.V. Variacii potokov elektronov v radiacionnyh pojasah zemli v mae 2009 goda po nabluydenijam s pomoshchju pribora "STEP-F" // The Journal of Kharkiv National University, physical series "Nuclei, Particles, Fields". - 2010. – No.916. – Vyp. 3/47. - P.49-58.
3. Agostinelli S. et.al. GEANT4 version4.9.1.p02. // Nucl.Instr. and Meth. – 2003. – Vol.A506. – P.250-303
4. Goka T., Matsumoto H. Measurement of near earth radiation environment in JAXA – over view and plan – Japan Aerospace Exploration Agency, Sengen 2-2-1, Ibaraki, 305-8505, Japan
5. Torrmoznaja spocobnost elektronov i pozitronov, doklad 37 MKRE, pod. red. Kerim-Markysa I.B. – Moskva: Energoatomizdat, 1987. – 328 p
6. Galper A.M. Radiacionnyj pojas Zemli. // SOZh, №6, S.75-81, 1999.
7. <http://smdc.sinp.msu.ru>
8. Kalegaev V.V., Parunakyan D.A. Sistema obrabotki i hraneniya dannuh izmerenij pribora «Electron-M-PESKA» v eksperimente na ICS "Coronas-Photon". V sbornike: Pervye etapy lyotnyh ispytanij i vypolnenie programmy nauchnyh issledovanij po proektu "Coronas-photon", Trudy rabocheho soveshchsniya. Russia, Tarusa, April 22-24, 2009. - 126p.

PACS: 67.85.Fg

ON THE VORTEX STRUCTURE IN TWO COMPONENT BOSE-EINSTEIN CONDENSATE

A.P. Ivashin*, Yu.M. Poluektov**

National Science Centre "Kharkov institute of physics and technology"

* E-mail: ivashin@kipt.kharkov.ua.

** E-mail: yuripoluektov@kipt.kharkov.ua

Received September 4, 2014

The vortex structure in a space-homogeneous Bose-Einstein condensate of two particle species with different masses has been studied. It is shown that the vortex structure in the two-component condensate is described by three dimensionless parameters, which define the system. That is different from the usual one-component condensate, where the vortex is described by a parameter-less dimensionless equation with a fixed structure. A few types of vortices with different qualitative structure are explored. In particular, it is shown, that the vortex structure strongly depends on the sign of "interaction" constant of the components. There can exist the super-density vortices, when the "interaction" constant is positive. These vortices have the near-axis density greater than the equilibrium density of a homogeneous space Bose-Einstein condensate. We show that there can exist the vortices with opposite direction of the condensate rotation near the axis and far off the axis.

KEY WORDS: Bose Einstein multi-component condensate, Gross-Pitaevskii equations, quantum vortex

ПРО СТРУКТУРУ ВИХРІВ У ДВОХКОМПОНЕНТНОМУ БОЗЕ-ЕЙНШТЕЙНІВСЬКОМУ КОНДЕНСАТІ

А.П. Івашин, Ю.М. Полуктов

Національний науковий центр "Харківський фізико-технічний інститут"

61108, м. Харків, вул. Академічна, 1

Досліджено структуру вихрів у просторово-однорідному бозе - ейнштейнівському конденсаті частинок двох сортів з різними масами. Показано, що у двохкомпонентному випадку структура вихра визначається трьома безрозмірними параметрами, що характеризують систему. Це суттєво відрізняється від звичайного однокомпонентного випадку, де вихор описується рівнянням, яке у безрозмірній формі взагалі не містить параметрів системи, а тому його структура незмінна. Вивчено деякі типи вихрів з якісно відмінною структурою. Зокрема, показано, що структура вихра істотно залежить від знака постійної "взаємодії" компонент. При позитивному значенні цієї постійної можуть існувати "вихри з підвищеною густиною". У таких вихрів густина поблизу осі вихра більше за рівноважну густину просторово-однорідного конденсату. Показано, що можуть існувати вихри, у яких конденсат поблизу осі і на великих відстанях від осі вихра обертається в протилежні сторони.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: бозе - ейнштейнівській багатокомпонентний конденсат, рівняння Гросса - Пітаєвського, квантований вихор

О СТРУКТУРЕ ВИХРЕЙ В ДВУХКОМПОНЕНТНОМ БОЗЕ-ЭЙНШТЕЙНОВСКОМ КОНДЕНСАТЕ

А.П. Ивашин*, Ю.М. Полуктов**

Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт"

61108, г. Харьков, ул. Академическая, 1

Исследована структура вихрей в пространственно-однородном бозе-эйштейновском конденсате частиц двух сортов с различными массами. Показано, что в двухкомпонентном случае структура вихря определяется тремя безразмерными параметрами, характеризующими систему. Это существенно отличается от обычного однокомпонентного случая, где вихрь описывается уравнением, которое в безразмерной форме вообще не содержит параметров системы, а потому его структура неизменна. Изучены некоторые типы вихрей с качественно различающейся структурой. В частности, показано, что структура вихря существенно зависит от знака постоянной «взаимодействия» компонент. При положительном значении этой постоянной могут существовать «вихри с уплотнением». У таких вихрей плотность вблизи оси вихря превосходит равновесную плотность пространственно-однородного конденсата. Показано, что могут существовать вихри, у которых конденсат вблизи оси и на больших расстояниях от оси вихря вращается в противоположные стороны.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: бозе-эйштейновский многокомпонентный конденсат, уравнения Гросса-Питаевского, квантованный вихрь

В работах [1,2] была исследована квантованная вихревая нить в слабонеидеальном бозе-газе. Структура этого вихря такова, что на оси вихря плотность бозе-эйштейновского конденсата (БЭК) обращается в ноль и монотонно возрастает до равновесного значения плотности пространственно-однородной системы. Характерное расстояние, на котором меняется плотность вблизи оси вихря, определяется корреляционной длиной, зависящей от массы частицы, равновесной плотности и постоянной межчастичного взаимодействия. Корреляционная длина определяет размер сердцевин вихря. Уравнение, описывающее вихрь в однокомпонентной системе, если его записать в безразмерной форме, является универсальным и не содержит никаких параметров, характеризующих систему [3], а, следовательно, структура вихрей во всех

однокомпонентных системах одинакова. Влияние эффектов нелокальности на структуру вихря рассматривалось в [4].

Создание БЭК в атомных газах щелочных элементов, удерживаемых в магнитных или лазерных ловушках [5-8], позволило получить и экспериментально изучать вихри в пространственно-неоднородных условиях [9-13]. Исследовались не только однокомпонентные системы, но была реализована возможность создавать конденсаты смеси двух или нескольких сортов частиц и вихревые состояния в таких более сложных системах [11-13]. Хотя двухкомпонентные БЭК в ловушках и вихри в них изучались теоретически [7,8,14-18], но детальный анализ структуры вихря в таких системах в зависимости от характеристик среды, насколько известно авторам, отсутствует для пространственно-однородного случая.

Целью данной работы является исследование структуры вихрей в пространственно-однородном бозе-эйнштейновском конденсате частиц двух сортов с различными массами. Показано, что в этом двухкомпонентном случае структура вихря зависит от трех безразмерных параметров. Изменение плотностей каждой из компонент, суммарной плотности, а также плотности потока массы в зависимости от расстояния до оси вихря определяется значениями этих параметров. Обращается внимание, что рассмотренная система существенно отличается от однокомпонентного случая, где вихрь описывается универсальным нелинейным уравнением, которое в безразмерной форме вообще не содержит характеристик системы [1-3]. Изучены некоторые возможные, качественно различные структуры вихрей при различных наборах параметров, характеризующих двухкомпонентный конденсат. Показано, что структура вихря существенно зависит от знака постоянной «взаимодействия» компонент. В частности, при положительном значении постоянной взаимодействия, оказывается возможным существование своеобразных «вихрей с уплотнением». В таких вихрях полная плотность вблизи оси может превосходить равновесную плотность пространственно-однородного конденсата, что невозможно в однокомпонентном случае. Показано также, что могут существовать вихри, у которых конденсат вблизи оси и на больших расстояниях от оси вихря вращается в противоположные стороны.

В статье система уравнений Гросса-Питаевского (ГП) для двухкомпонентного БЭК представлена в безразмерной симметричной форме. Система содержит пять безразмерных параметров, из которых только три параметра являются независимыми. Далее уравнения ГП для модулей макроскопических волновых функций записаны в цилиндрической системе координат при наличии вихревого движения с двумя квантованными циркуляциями. Исследована асимптотика решений на больших расстояниях от оси вихря. Показано, что решения уравнений могут стремиться к своему асимптотическому значению как «сверху», так и «снизу», так что при определенных условиях полная плотность вблизи оси вихря может быть больше равновесной плотности на бесконечности. Некоторые, качественно различные структуры вихря при различных наборах параметров, описывающих систему, изучены численно. Рассмотрены случаи, когда отлична от нуля циркуляция только одной из компонент и когда не равны нулю обе циркуляции. Проанализировано распределение плотности потока массы в вихревой нити.

УРАВНЕНИЯ ГРОССА-ПИТАЕВСКОГО ДЛЯ ДВУХКОМПОНЕНТНОЙ СИСТЕМЫ

Бозе-эйнштейновский конденсат состоящий из частиц двух сортов с массами m_1, m_2 и плотностями n_1, n_2 описывается стационарными уравнениями Гросса-Питаевского для макроскопических волновых функций $\Phi_1(\mathbf{r}), \Phi_2(\mathbf{r})$ [7,8]

$$\begin{aligned} -\frac{\hbar^2}{2m_1} \Delta \Phi_1(\mathbf{r}) + g_{11} \Phi_1(\mathbf{r}) |\Phi_1(\mathbf{r})|^2 + g_{12} \Phi_1(\mathbf{r}) |\Phi_2(\mathbf{r})|^2 &= \mu_1 \Phi_1(\mathbf{r}), \\ -\frac{\hbar^2}{2m_2} \Delta \Phi_2(\mathbf{r}) + g_{22} \Phi_2(\mathbf{r}) |\Phi_2(\mathbf{r})|^2 + g_{21} \Phi_2(\mathbf{r}) |\Phi_1(\mathbf{r})|^2 &= \mu_2 \Phi_2(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (1)$$

Число частиц каждого сорта определяется соотношениями

$$N_i = \int |\Phi_i(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}, \quad (i=1,2). \quad (2)$$

В дальнейшем будем пользоваться индексами $i, k=1,2$ для обозначения сортов частиц и компонент конденсата. В комплексных функциях можно выделить модули ρ_i и фазы χ_i , записав их в виде $\Phi_i(\mathbf{r}) = \rho_i(\mathbf{r}) \exp[i\chi_i(\mathbf{r})]$. Тогда плотности числа частиц $n_i(\mathbf{r})$ и скорости $\mathbf{v}_i(\mathbf{r})$ каждой компоненты выражаются через модуль и фазу

$$n_i(\mathbf{r}) = \rho_i^2(\mathbf{r}), \quad \mathbf{v}_i(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{m_i} \nabla \chi_i(\mathbf{r}). \quad (3)$$

В пространственно-однородном состоянии химические потенциалы μ_1, μ_2 связаны с равновесными плотностями

$$\mu_1 = g_{11} n_{10} + g_{12} n_{20}, \quad \mu_2 = g_{22} n_{20} + g_{21} n_{10}. \quad (4)$$

Будем предполагать выполненными условия устойчивости пространственно-однородного состояния системы [7,8]

$$g_{11} > 0, \quad g_{22} > 0, \quad g_{11}g_{22} - g_{12}^2 > 0. \quad (5)$$

Удобно перейти к безразмерным функциям $\psi_1 = \Phi_1/\sqrt{n_{10}}$, $\psi_2 = \Phi_2/\sqrt{n_{20}}$. Определим длины когерентности для первой и второй компоненты конденсата соотношениями

$$\xi_1 \equiv \frac{\hbar}{\sqrt{2m_1g_{11}n_{10}}}, \quad \xi_2 \equiv \frac{\hbar}{\sqrt{2m_2g_{22}n_{20}}}. \quad (6)$$

и введем эффективную длину когерентности $\xi = \sqrt{\xi_1^2 + \xi_2^2}$, с помощью которой определим безразмерные координаты $\tilde{\mathbf{r}} = \mathbf{r}/\xi$, так что $\Delta = \xi^{-2}\tilde{\Delta}$. В дальнейшем значок тильды будем опускать. В безразмерной форме система уравнений (1) принимает вид

$$\begin{aligned} -\Delta\psi_1(\mathbf{r}) + A_1(|\psi_1(\mathbf{r})|^2 - 1)\psi_1(\mathbf{r}) + uB_1(|\psi_2(\mathbf{r})|^2 - 1)\psi_1(\mathbf{r}) &= 0, \\ -\Delta\psi_2(\mathbf{r}) + A_2(|\psi_2(\mathbf{r})|^2 - 1)\psi_2(\mathbf{r}) + uB_2(|\psi_1(\mathbf{r})|^2 - 1)\psi_2(\mathbf{r}) &= 0. \end{aligned} \quad (7)$$

Система уравнений (7) записана в симметричной форме и содержит пять безразмерных коэффициентов: A_1, A_2, B_1, B_2 и $u \equiv g_{12}/\sqrt{g_{11}g_{22}}$. Коэффициенты A_i, B_i не являются независимыми, а выражаются через два безразмерных положительных параметра, один из которых определяется отношением длин когерентности $\zeta^2 \equiv (\xi_2/\xi_1)^2$, а второй выражается через отношение плотностей и постоянных взаимодействия в каждой из компонент $\eta \equiv (n_{20}/n_{10})\sqrt{g_{22}/g_{11}}$. Таким образом, решения системы уравнений (1) зависят от трех независимых безразмерных параметров, в качестве которых выберем величины

$$\zeta^2 \equiv \left(\frac{\xi_2}{\xi_1}\right)^2, \quad \eta \equiv \frac{n_{20}}{n_{10}}\sqrt{\frac{g_{22}}{g_{11}}}, \quad u = \frac{g_{12}}{\sqrt{g_{11}g_{22}}}. \quad (8)$$

Первые два параметра в (8) положительны, а для третьего, в силу условий (5) справедливо неравенство $u^2 < 1$. Коэффициенты в уравнениях (7) через параметры (8) выражаются формулами

$$\begin{aligned} A_1 &\equiv 1 + \zeta^2, & A_2 &\equiv 1 + \zeta^{-2}, \\ B_1 &\equiv A_1\eta, & B_2 &\equiv A_2\eta^{-1}. \end{aligned} \quad (9)$$

Следует подчеркнуть, что в отличие от однокомпонентного случая, где уравнение в безразмерной форме не содержит параметров среды и является универсальным, в двухкомпонентном конденсате коэффициенты системы уравнений определяются тремя безразмерными независимыми параметрами (8). В зависимости от величины этих коэффициентов вихрь, как будет показано, может иметь различную структуру.

УРАВНЕНИЯ ГРОССА-ПИТАЕВСКОГО ДЛЯ ВИХРЯ

Будем искать симметричные относительно оси z решения системы уравнений (7) в виде $\psi_i(r, \phi) = f_i(r)\exp[i\chi_i(\phi)]$, где r, ϕ - цилиндрические координаты. Для такой функции скорости компонент имеют вид

$$\mathbf{v}_i = \frac{\hbar}{m_i r} \frac{d\chi_i(\phi)}{d\phi} \mathbf{e}_\phi, \quad (10)$$

где \mathbf{e}_ϕ - единичный вектор, направленный по касательным к окружностям с центром на оси z .

Для функций $f_i(r)$ из (7) получаем систему уравнений:

$$\begin{aligned} -\frac{d^2 f_1}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{df_1}{dr} + \frac{l_1^2}{r^2} f_1 + A_1(f_1^2 - 1)f_1 + uB_1(f_2^2 - 1)f_1 &= 0, \\ -\frac{d^2 f_2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{df_2}{dr} + \frac{l_2^2}{r^2} f_2 + A_2(f_2^2 - 1)f_2 + uB_2(f_1^2 - 1)f_2 &= 0. \end{aligned} \quad (11)$$

Будем изучать решения этих уравнений при следующих граничных условиях: при $l_i^2 \geq 1$ полагаем $f_i(0) = 0$ и $f_i(\infty) = 1$, а при $l_i = 0$ полагаем $(df_i/dr)(0) = 0$, $f_i(\infty) = 1$.

Полная плотность числа частиц в вихре

$$n(r) = n_{10}f_1^2(r) + n_{20}f_2^2(r). \quad (12)$$

Вдали от оси вихря полная плотность числа частиц равна равновесной плотности $n(\infty) \equiv n_0 = n_{10} + n_{20}$. Фаза

макроскопической волновой функции выбирается в виде $\chi_i(\phi) = l_i \phi$, где $l_i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$. Знак величины l_i определяет направление вращения вихря. В двухкомпонентной системе с вихревым движением в каждой из компонент может быть связана своя квантованная циркуляция:

$$\Gamma_i \equiv \oint \mathbf{v}_i \cdot d\mathbf{l} = \frac{2\pi \hbar l_i}{m_i}. \quad (13)$$

Интересной особенностью двухкомпонентного конденсата является возможность существования вихря только в одной из компонент, тогда как в другой компоненте движение остается безвихревым и в этой компоненте циркуляция равна нулю. Этой ситуации отвечают наборы чисел $l_1 = \pm 1$ и $l_2 = 0$, либо $l_1 = 0$ $l_2 = \pm 1$. Еще одна существенная особенность проявляется в возможности вращения компонент в противоположных направлениях, чему, например, соответствует набор чисел $l_1 = +1$ и $l_2 = -1$. Плотность потока массы в вихревой нити двухкомпонентного конденсата определена соотношением

$$\mathbf{J} = \frac{\hbar}{r} [l_1 n_{10} f_1^2(r) + l_2 n_{20} f_2^2(r)] \mathbf{e}_\phi \equiv J_\phi(r) \mathbf{e}_\phi. \quad (14)$$

С учетом этого, угловой момент вихря $\mathbf{L} = \int [\mathbf{r} \times \mathbf{J}] d\mathbf{r}$ в двухкомпонентном БЭК дается формулой

$$\mathbf{L} = \hbar (l_1 N_1 + l_2 N_2) \mathbf{e}_z, \quad (15)$$

где \mathbf{e}_z - орт вдоль оси вихря, а $N_i = 2\pi n_{i0} L_v \int_0^\infty f_i^2(r) r dr$ - полное число частиц сорта i , L_v - длина вихря.

Обратим внимание, что распределение плотностей компонент не зависит от знака циркуляции, а угловой момент (15), естественно, от него зависит. Если вращение компонент противоположное, то при выполнении условия $l_1 n_{10} + l_2 n_{20} = 0$ полный момент вращения вихря обращается в ноль.

РЕШЕНИЯ УРАВНЕНИЙ ДЛЯ ВИХРЯ НА БОЛЬШИХ РАССТОЯНИЯХ

Рассмотрим асимптотику решений уравнений (11). На больших расстояниях $r \gg 1$ решения уравнений

(11) имеют вид $f_i \approx 1 + \frac{a_i}{r^2}$, где

$$a_1 = -\frac{(l_1^2 A_2 - u \eta l_2^2 A_1)}{2A_1 A_2 (1-u^2)}, \quad a_2 = -\frac{(l_2^2 A_1 - u \eta^{-1} l_1^2 A_2)}{2A_1 A_2 (1-u^2)}. \quad (16)$$

Знаменатель в этих формулах всегда положителен, а числитель может иметь разный знак. В зависимости от знака параметра a_i модуль макроскопической волновой функции к своему равновесному значению на бесконечности равному единице может приближаться либо со стороны больших («сверху»), либо со стороны меньших («снизу») значений. Очевидно, что если $u < 0$, то оба параметра a_i отрицательны. Если же $u > 0$, то возможна ситуация, когда один из этих параметров положителен, а другой – отрицателен. Пусть вначале $l_1^2 > 0$ и $l_2^2 > 0$. Тогда при $u > 0$ могут реализовываться следующие случаи:

- 1) если $A_2/A_1 < u \eta (l_2^2/l_1^2)$, то $a_1 > 0$, $a_2 < 0$,
- 2) если $u \eta (l_2^2/l_1^2) < A_2/A_1 < u^{-1} \eta (l_2^2/l_1^2)$, то $a_1 < 0$, $a_2 < 0$,
- 3) если $A_2/A_1 > u^{-1} \eta (l_2^2/l_1^2)$, $a_1 < 0$, $a_2 > 0$.

Если же у одной из компонент, например у второй, циркуляция отсутствует $l_2 = 0$, то $a_1 = -l_1^2 A_2 / 2A_1 A_2 (1-u^2)$, $a_2 = u \eta^{-1} l_1^2 A_2 / 2A_1 A_2 (1-u^2)$. В этом случае всегда $a_1 < 0$, а знак a_2 может быть как положительным, так и отрицательным и совпадает со знаком постоянной взаимодействия между компонентами $u = g_{12} / \sqrt{g_{11} g_{22}}$.

Поведение полной плотности на больших расстояниях, согласно (12), (16) определяется формулой

$$\frac{n(r)}{n_0} = 1 + \frac{2a_D}{n_0 r^2}, \quad (17)$$

где

$$a_D = a_1 n_{10} + a_2 n_{20} = -\frac{[(n_{10} l_1^2 A_2 + n_{20} l_2^2 A_1) - u (n_{10} \eta l_2^2 A_1 + n_{20} \eta^{-1} l_1^2 A_2)]}{2A_1 A_2 (1-u^2)}. \quad (18)$$

Параметр a_D (18) обращается в ноль при $u = u_*$, где

$$u_* = \frac{(n_{10}l_1^2 A_2 + n_{20}l_2^2 A_1)}{(n_{20}\eta^{-1}l_1^2 A_2 + n_{10}\eta l_2^2 A_1)}. \quad (19)$$

Если положительный параметр $u_* > 1$, то при любых допустимых значениях u всегда $a_D < 0$ и, следовательно, полная плотность к своему равновесному значению на бесконечности подходит «снизу». Интересная возможность возникает, если $u_* < 1$. В этом случае возможна ситуация, когда $u > u_*$ и $a_D > 0$. Это означает, что полная плотность к своему равновесному значению на бесконечности подходит «сверху», т.е. плотность вблизи оси вихря оказывается больше равновесной плотности на бесконечности. Подчеркнем, что возможность существования таких «вихрей с уплотнением» вблизи сердцевинки является особенностью именно многокомпонентного конденсата.

Когда во второй компоненте циркуляция отсутствует $l_2 = 0$, то a_D имеет простой вид

$$a_D = \frac{l_1^2 (n_{10} - u\eta^{-1}n_{20})}{2A_1(1-u^2)}. \quad (20)$$

При выполнении условия $n_{10} > u\eta^{-1}n_{20}$, которое с учетом определений (8) эквивалентно условию $g_{22} > g_{12}$, коэффициент (20) положителен. В этом случае полная плотность вблизи оси вихря оказывается больше равновесного значения плотности на бесконечности.

СТРУКТУРА ВИХРЯ ПРИ РАЗНЫХ ЗНАКАХ ПОСТОЯННОЙ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ КОМПОНЕНТ

Исследуем численно структуру вихря при разных знаках и величине параметра u , определяющего «взаимодействие» компонент БЭК. Рассмотрим вначале случай, когда вихревое движение во второй компоненте отсутствует, так что $l_2 = 0$. Положим при численных расчетах, что $\zeta = \eta = 1$, следовательно, $A_1 = A_2 = B_1 = B_2 = 2$, и $u_* = n_{10} / n_{20}$ (19). Параметр межкомпонентного взаимодействия может меняться в интервале $-1 < u < 1$.

Численные решения уравнений (11) и поведение полной плотности в зависимости от расстояния до оси вихря при $u = \pm 0,9$ показаны на рисунке 1.

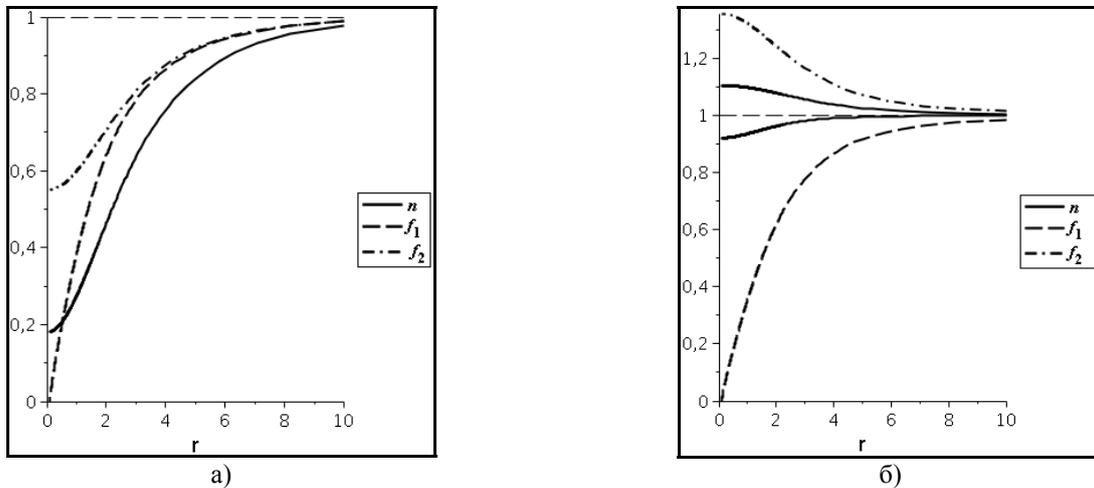


Рис.1. Решения уравнений ГП $f_1(r)$ (при $l_1^2 = 1$), $f_2(r)$ (при $l_2 = 0$) и полная плотность $n(r)$: а) $u = -0,9$; б) $u = 0,9$. Верхняя сплошная кривая показывает поведение полной плотности при $u_* = n_{10} / n_{20} = 2/3 < 0,9$, нижняя – при $u_* = n_{10} / n_{20} = 1 > 0,9$.

На рис. 1а представлены решения уравнений (11) и поведение полной плотности при $u = -0,9$, $u_* = n_{10} / n_{20} = 2/3$. В этом случае модуль макроскопической волновой функции компоненты с вихрем, на оси обращается в ноль, а у компоненты, где вихрь отсутствует, он принимает конечное значение меньше единицы. Волновые функции обеих компонент и относительная полная плотность монотонно возрастают с расстоянием, приближаясь к равновесным значениям. Полная плотность на оси такого вихря, в отличие от обычного вихря однокомпонентного БЭК, не обращается в ноль.

На рис. 1б показаны аналогичные зависимости при $u = 0,9$. Здесь, в отличие от предыдущего случая, величина модуля волновой функции компоненты без вихревого движения, на оси вихря больше ее значения на бесконечности, и она монотонно убывает с увеличением расстояния, приближаясь к единице сверху. Модуль волновой функции компоненты с вихревым движением монотонно возрастает с расстоянием от нуля до

равновесного значения. Поведение полной плотности в данном случае может быть различным: при $u > u_*$ она монотонно убывает от значения, большего равновесного (верхняя сплошная кривая на рис. 1б), а при $u < u_*$ плотность монотонно возрастает от конечного значения на оси, меньшего единицы (нижняя сплошная кривая на рис. 1б). Полученные численно вихревые решения с конечной плотностью на оси, и вихревые решения у которых плотность на оси больше равновесной, качественно отличны от обычных вихрей в однокомпонентном БЭК.

Численный расчет для меньших по абсолютной величине постоянных взаимодействия $|u|$ показывает, что в этом случае качественно поведение решений уравнения ГП и полной плотности не меняется. С ослаблением взаимодействия между компонентами, распределение модуля волновой функции в безвихревой компоненте становится более равномерным, приближаясь к однородному распределению $f_2 = 1$.

Перейдем к рассмотрению случая, когда с вихрем связаны две циркуляции, полагая $l_1^2 = l_2^2 = 1$. При численных расчетах, как и выше, полагаем что $\zeta = 1$, а параметр η может иметь произвольное положительное значение. Следовательно, $A_1 = A_2 = 2$ и $B_1 = 2\eta$, $B_2 = 2\eta^{-1}$. Параметр межкомпонентного взаимодействия по-прежнему может меняться в интервале $-1 < u < 1$. Здесь, как и в рассмотренном выше случае, возможны ситуации, когда плотности компонент к своим равновесным значениям на бесконечности будут подходить «снизу» и «сверху» в зависимости от знака постоянных a_i в (16). Возможны следующие случаи:

- 1) при $u > \eta$ имеем $a_1 < 0, a_2 > 0$; 2) при $\eta > 1/u$ имеем $a_1 > 0, a_2 < 0$; 3) при $u < \eta < 1/u$ имеем $a_1 < 0, a_2 < 0$.

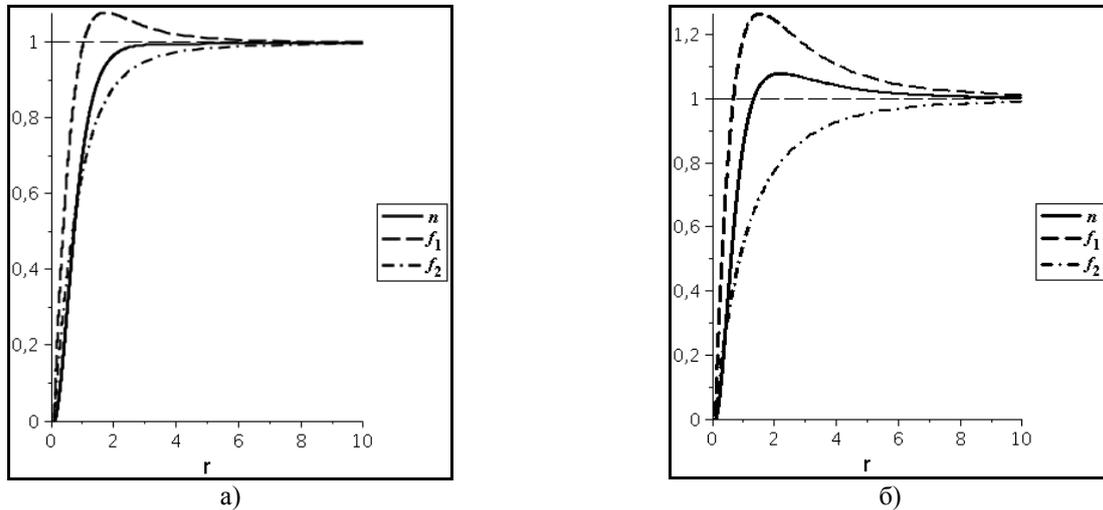


Рис.2. Решения уравнений ГП $f_1(r)$, $f_2(r)$ и полная плотность $n(r)$ при $l_1^2 = l_2^2 = 1$:
а) $u = 0,7$, б) $u = 0,9$. ($\zeta = 1, \eta = 2, u_* = 0,8, n_{10} = n_{20}$).

На рис. 2 приведены зависимости решений уравнений ГП при параметрах, когда одно из решений стремится к значению на бесконечности «снизу», а другое – «сверху». Если параметр u меньше критического значения u_* (19) (рис. 2а), то полная плотность монотонно возрастает с увеличением расстояния до оси. Если же $u > u_*$, то реализуется структура вихря, качественно отличная от структуры вихря в однокомпонентном случае (рис. 2б). Плотность от нулевого значения на оси возрастает до некоторого максимального значения, превосходящего плотность на бесконечности, а затем она монотонно убывает с расстоянием до равновесной плотности. В этом случае вихрь представляет собой своеобразную трубку, почти пустую внутри, ограниченную плотной стенкой. Таким образом, показано, что могут существовать два типа «вихрей с уплотнением». В одном случае плотность на оси вихря превосходит равновесную, монотонно убывая с расстоянием (рис. 1б). В другом случае, при равной нулю плотности на оси, плотность достигает максимального значения, большего равновесного, на некотором расстоянии порядка корреляционной длины (рис. 2б).

ПЛОТНОСТЬ ПОТОКА МАССЫ В ВИХРЕВОЙ НИТИ

Представляет интерес рассмотреть изменение с расстоянием от оси вихря плотности потока массы, определенной формулой (14), которую удобно записать в безразмерном виде

$$\frac{J_\varphi(r)}{J_{\varphi 0}} = \frac{1}{r} \left[l_1 \frac{n_{10}}{n_0} f_1^2(r) + l_2 \frac{n_{20}}{n_0} f_2^2(r) \right], \tag{21}$$

где $J_{\varphi 0} = \hbar n_0 / \xi$. При $r \ll 1$ и $l_1^2 \neq 0, l_2^2 \neq 0$ решения уравнений (11) обращаются в нуль по закону

$f_1 \approx C_1 r$, $f_2 \approx C_2 r$. Учитывая это, а также то, что при $r \gg 1$ имеем $f_1 \approx f_2 \approx 1$, находим выражения для плотности потока массы на малых и больших расстояниях:

$$\frac{J_\varphi(r)}{J_{\varphi 0}} \approx \gamma_0 r, \quad (r \ll 1); \quad \frac{J_\varphi(r)}{J_{\varphi 0}} \approx \frac{\gamma_\infty}{r}, \quad (r \gg 1). \quad (22)$$

Направления вращения вблизи оси вихря и на больших расстояниях определяются знаками коэффициентов

$$\gamma_0 \equiv l_1 \frac{n_{10}}{n_0} C_1^2 + l_2 \frac{n_{20}}{n_0} C_2^2, \quad \gamma_\infty \equiv l_1 \frac{n_{10}}{n_0} + l_2 \frac{n_{20}}{n_0}. \quad (23)$$

Коэффициенты C_1, C_2 аналитически рассчитаны быть не могут, но численные расчеты показывают, что при противоположных знаках l_1 и l_2 коэффициенты (23) могут иметь разный знак. Это означает, что в таком случае конденсат в вихре вблизи оси и на больших расстояниях вращается в противоположные стороны. На рис. 3 показаны зависимости плотности потока массы в вихре от расстояния до его оси.

Сплошная кривая отвечает случаю, когда знаки l_1 и l_2 одинаковы. В этом случае распределение потока массы качественно не отличается от распределения в однокомпонентном БЭК (точечная кривая). Наиболее интересен случай, когда знаки l_1 и l_2 противоположны. Зависимости плотности потока массы в вихре от расстояния до его оси в этом случае показаны штриховыми линиями. Зависимости на рисунке 3а рассчитаны для набора параметров: $n_{10}/n_{20} = 3/2$, $\zeta = \sqrt{3/2}$, $\eta = 4/3$, $u = 0,7$. В этом случае вращение конденсата на любом расстоянии от оси происходит в одну сторону. При наборе параметров $n_{10}/n_{20} = 2/3$, $\zeta = \sqrt{2/3}$, $\eta = 3$, $u = 0,7$, реализуется ситуация, при которой вращение конденсата вблизи оси вихря и на больших расстояниях направлено в противоположные стороны (рис. 3б).

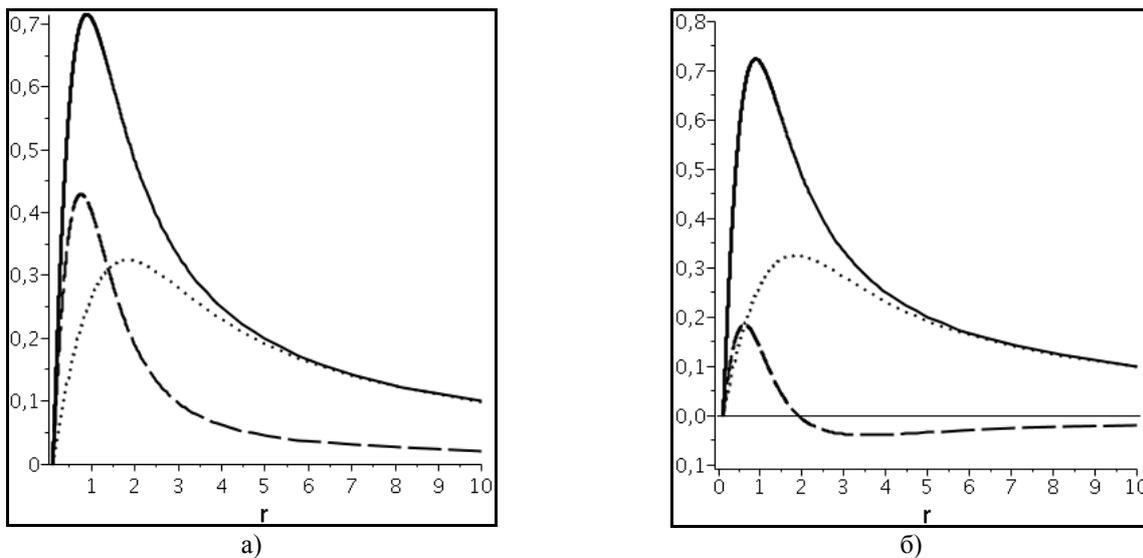


Рис.3. Полные плотности потока массы как функции расстояния до оси вихря. По оси ординат отложена величина $J_\varphi(r)/J_{\varphi 0}$, где $J_{\varphi 0} = \hbar n_0 / \xi$. Сплошные кривые отвечают одинаковым знакам l_1 и l_2 , а штриховые кривые - различным.

На рисунке б) показан случай перемены направления вращения в вихре. Точечная кривая относится к обычному однокомпонентному случаю.

Отметим, что некоторые эффекты в квантованных вихрях с противоположным вращением в двухкомпонентном конденсате в атомарных газах исследовались также в недавней работе [19].

ВЫВОДЫ

В однокомпонентном БЭК структура вихря универсальна и не зависит от характеристик среды. Имеет место своеобразный закон соответственных состояний, состоящий в том, что уравнение для вихря, записанное в безразмерной форме не содержит никаких параметров, характеризующих систему. Это не выполняется для конденсатов, состоящих из частиц разного сорта. В частности, вихри в двухкомпонентном конденсате характеризуются тремя независимыми безразмерными параметрами и, в зависимости от соотношения между ними, могут иметь различную структуру. Некоторые возможные структуры вихрей, несущих одну и две квантованные циркуляции, в двухкомпонентном БЭК рассмотрены в данной работе. Приведены численные решения системы уравнений ГП при различных параметрах. Показано, что распределение плотности в вихре

существенно зависит от знака параметра, описывающего взаимодействие компонент. При его положительном значении, имеются решения, когда плотность вблизи оси вихря оказывается больше равновесной плотности на бесконечности («вихри с уплотнением»). Если вихрь несет одну квантованную циркуляцию, у него плотность на оси может достигать максимального значения, превосходящего равновесную плотность. Для вихрей с двумя квантованными циркуляциями плотность на оси равна нулю, а максимум плотности, превосходящий равновесное значение, достигается на расстоянии от оси порядка корреляционной длины.

Еще одна интересная особенность вихрей, рассмотренная в данной работе, состоит в возможности изменения направления вращения внутри вихря. Показано, что могут существовать вихри, у которых направления вращения вблизи оси вихря и вдали от нее противоположны. Изучены асимптотики вихревых решений на больших расстояниях и показано, что их анализ позволяет делать качественные заключения о структуре вихря.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Pitaevskii L.P. Vihrevye linii v neideal'nom Boze-gaze // ZhETF. – 1961. –Т. 40. – S. 646-651.
2. Gross E.P. Structure of a quantized vortex in boson system // Nuovo Cimento. –1961. – Vol. 20. – P. 454-457.
3. Lifshits E.M., Pitaevskii L.P. Statisticheskaya fizika. Chast' 2. – М.: Nauka, 1978. – 447 s.
4. Ivashin A.P., Poluektov Y.M. Nonlocal effect influence on the vortex filament structure in bose-gas // Problems of atomic science and technology, Series: Nuclear Physic Investigations (57). – 2012. – No.1. — P. 265-267.
5. Pitaevskii L.P. Kondensatsiya Boze-Einshteina v magnitnykh lovushkakh. Vvedenie v teoriyu // UFN. – 1998. – Tom. 168. – S. 641-653; Kondensaty Boze-Einshteina v pole lazernogo izlucheniya // UFN. – 2006. – Tom. 176. – S.345-364.
6. Kadomtsev B.B., Kadomtsev M.B. Kondensaty Boze-Einshteina // UFN. – 1997. – Tom.167. – S. 649-664.
7. Pethick C.J., Smith H. Bose-Einstein Condensation in Dilute Gases, 2nd edn. – Cambridge: Cambridge University Press, 2008. – P. 569.
8. Pitaevskii L.P., Stringari S. Bose-Einstein Condensation. – Oxford: Oxford University Press, 2003. – P. 385.
9. Leanhardt A.E., Gorlitz A., Chikkatur A.P., Kielpinski D., Shin Y., Pritchard D.E., W. Ketterle W. Imprinting vortices in a Bose –Einstein condensate using topological phases // Phys. Rev. Lett. – 2002. – Vol.89. – P. 190403 (1-4).
10. Shin Y., Saba M., Vengalattore M., Pasquini T.A., Sanner C., Leanhardt A.E., Prentiss M., Pritchard D.E. and Ketterle W. Dynamical instability of a doubly quantized vortex in a Bose-Einstein condensate // Phys. Rev. Lett. – 2004. – Vol.93. – P. 160406 (1-4).
11. Myat C.J., Burt E.A., Ghrist R.W., Cornell E.A., Wieman C.E. Production of two overlapping Bose-Einstein condensates by sympathetic cooling // Phys. Rev. Lett. –1997. – Vol.78. – P. 586-589.
12. Stamper-Kurn D.M., Andrews M.R., Chikkatur A.P., Inouye S., Miesner H.-J., Stenger J., Ketterle W. Optical confinement of a Bose-Einstein condensate // Phys. Rev. Lett. – 1998. – Vol.80. – P. 2027-2030.
13. Matthews M.R., Anderson B.P., Hajan P.C., Hall D.C., Wieman C.E., Cornell E.A. Vortices in Bose-Einstein condensate // Phys. Rev. Lett. – 1999. – Vol.83. – P. 2498-2501.
14. Ho T.L., Shenoy V.B. Binary mixtures of Bose condensates of alkali atoms // Phys. Rev. Lett. – 1996. – Vol.77. – P. 3276-3279.
15. Ho T.L. Spinor Bose condensates in optical traps // Phys. Rev. Lett. – 1998. – Vol.81. – P. 742-745.
16. Garcia-Ripoll J.J., Perez-Garcia V.M. Two-mode theory of vortex stability in multicomponent Bose-Einstein condensates // Phys. Rev. A. – 2000. – Vol.62. – P.033601 (1-8).
17. Fetter A.L., Svidzinsky A.A. Vortices in a trapped dilute Bose-Einstein condensate // J. Phys. Condens. Matter. – 2001. – Vol.13. – R135-R194.
18. Kasamatsu K., Tsubota M., Ueda M. Vortices in multicomponent Bose-Einstein condensates // Int. J. Mod. Phys. B. – 2005. – Vol.19. – P. 1835-1904.
19. Ishino S., Tsubota M., Takeuchi H. Instability of overlapped vortices rotating in opposite directions in binary Bose-Einstein condensates // J. Low Temp. Phys. B. – 2013. – Vol.171. – P. 429-435.

PACS: 05.70. Ln; 61.72.jd. 61.72 Qq, 62.20.fg, 81.30.30.Kf

“PARADOX” OF THE VOID NUCLEATION**I.N. Laptev¹, O.O. Parkhomenko^{1,2}, V.I. Tkachenko^{1,2}**¹*National Scientific Center “Kharkiv Institute of Physics and Technology”**1, Akademicheskaya St., Kharkov, 61108, Ukraine*²*V.N. Karazin Kharkov National University**4 Svobody Sq., Kharkov, 61022, Ukraine**e-mail: parkhomenko@kipt.kharkov.ua*

Received September 8, 2014

On the basis of advanced before a method of phase diagrams martensitic transformations into systems such as « iron - carbon - vacancies », are determined energy of activation of formation of vacancies and voids. It is shown, that elastic volumetric deformation 11-th elementary tetragonal cells of iron (circuit Бейна) on 4,2 %, leads to formation of one structural vacancy. The data testify to significant power advantage of formation of vacancies (0.04 eV) and voids the critical size (3eV) on the mechanism of the opposites martensitic transformations, in comparison with ordinary diffusion mechanism (more 1eV- vacancy, and some tens eV-the void).

KEYWORDS: «iron-carbon- vacancies» system, martensitic transformation, vacancy and voids formation energy, radiation effects

«ПАРАДОКС» ЗАРОЖДЕНИЯ ПОР**И.Н. Лаптев¹, А.А. Пархоменко^{1,2}, В.И. Ткаченко^{1,2}**¹*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»**ул. Академическая 1, г. Харьков 61108, Украина*²*Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина**пл. Свободы 4, г. Харьков, 61022, Украина*

На основе развитого ранее метода фазовых диаграмм мартенситных превращений в системах «железо – углерод - вакансии», определены энергии активации образования вакансий и пор. Показано, что упругая объемная деформация 11-ти элементарных ОЦТ ячеек железа (схема Бейна) на 4,2% приводит к образованию одной структурной вакансии. Данные свидетельствуют о значительной энергетической выгоды образования вакансий (0,04 эВ) и зародышей пор критического размера (3эВ) по механизму обратных мартенситных превращений, по сравнению с диффузионным механизмом (более 1эВ - вакансия, и несколько десятков эВ - пора).

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: система «железо-углерод-вакансии», мартенситные превращения, энергия образования вакансий и пор, радиационные эффекты

«ПАРАДОКС» ЗАРОЖДЕНИЯ ПОР**І.М. Лаптев¹, О.О. Пархоменко^{1,2}, В.І. Ткаченко^{1,2}**¹*Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»**вул. Академічна 1, м. Харків 61108, Україна*²*Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна**пл. Свободи 4, м. Харків, 61022, Україна*

На основі розвинутого раніше методу фазових діаграм мартенситних перетворень у системах «залізо-вуглець-вакансії», визначені енергії активації утворення вакансій та пор. Показано, що пружна об'ємна деформація одинадцяти елементарних ОЦТ – ячіюк заліза (за схемою Бейна) на 4,2% призводить до створення однієї структурної вакансії. Дані свідчать про значну енергетичну вигідність утворення вакансій (0.04eV), та пор (3eV) за механізмом зворотніх мартенситних перетворень у порівнянні із дифузійним механізмом (більш, як 1eV - вакансія, та декілька десятків eV - пора).

КЛЮЧОВІ СЛОВА: система «залізо-вуглець-вакансії», мартенситні перетворення, енергія утворення вакансій и пор, радіаційні ефекти

Работа является продолжением исследований, направленных на развитие новых, альтернативных существующим, представлений о механизмах зарождения пор в сильнонеравновесных системах, таких, как облученные материалы, с помощью метода фазовых диаграмм мартенситных превращений (ФДМП) [1- 4].

В работе [1] предложен сам метод ФДМП, оригинальная модель зарождения пор и трещин в неравновесных системах на основе железа, за счет образования вакансий, выделяющихся при обратных мартенситных превращениях, а так же новый механизм хрупкого разрушения ОЦК металлов. Как показано в этой работе, модель находится в полном согласии с экспериментальными фактами: взрывной характер их образования (10⁻⁸с) за времена сравнимые с временами образования мартенсита, процесс протекает в упругой области деформаций, действующие напряжения – трехосное растяжение, стремящееся к гидростатическому.

В работе [2] предложен механизм образования мартенсита под действием облучения в низкоэнергетических каскадах смещений, с энергией ПВА не превышающей 5 кэв, уже при низких дозах реакторного облучения -менее 0.01 сна. Модель объясняет результаты магнитных измерений металла корпусов реакторов типа ВВЭР 1000, являющихся основой ядерной энергетики Украины.

В работе [3] на основе МФДМП предложена новая концепция имитации и прогнозирования

радиационного охрупчивания. Согласно ей, в качестве главного требования выдвигается не достижение подобия дефектной структуры материалов, облученных в реакторах и в ускорителях, а необходимость создания в результате имитационного облучения, деформирования, циклирования и т.д. подобия деформационно-напряженного состояния.

В работе [4] авторы ввели понятие о т.н. «тихом» растрескивании металла корпусов реакторов, как результате зарождения пор по механизму обратных мартенситных превращений с последующим их объединением под действием растягивающих напряжений в зародыши трещин.

В данной работе проанализированы существующие, фактически диффузионные, подходы к зарождению пор на основе т.н. гомогенной и гетерогенной моделей, связанные с вакансионным пересыщением. Суть тезиса о «парадоксе порообразования» состоит в том, что вакансионное пересыщение не может быть причиной зарождения пор при временах повреждаемости не превышающих диффузионные, как при сжимающих, так и при растягивающих напряжениях.

Предложенный оригинальный механизм зарождения пор устраняет сформулированный выше «парадокс порообразования», и показывает возможность повышения радиационной стойкости реакторных материалов, не за счет борьбы с набуханием как таковым, а за счет устранения причин его вызывающих, по аналогии с известной дилеммой: лечить болезнь, или устранить ее причину.

Целью данной работы является анализ эффективности образования вакансий и их комплексов (пор, петель) за счет механизма обратных мартенситных превращений в системах на основе железо-углерод, (в том числе в корпусных сталях атомных реакторов) и оценка энергетических параметров процесса.

ДИФФУЗИОННЫЕ МЕХАНИЗМЫ ЗАРОЖДЕНИЯ ПОР НА ОСНОВЕ РЕФЕРЕНСА

Общепринятые, так называемые, гомогенная и гетерогенная теории описывают процесс зарождение пор с помощью диффузионных механизмов последовательного присоединения вакансий к друг другу под облучением в условиях вакансионной пересыщенности [5]. При этом, источником самой вакансионной пересыщенности служит эффект преференса, связанный с преимущественной адсорбцией междоузельных атомов дислокациями по сравнению с вакансиями [6].

Однако еще в 80-х годах прошлого века было показано, что образование зародышей пор в условиях хаотической коалесценции диффундирующих вакансий является нереалистичным без участия атомов газа [7]. Тот факт, что вакансии сами по себе не приводят к порообразованию, подтвердился и в работах [8,9] где было показано, что и в меди, и в нержавеющей стали, которые были обезгажены перед облучением, порообразование было подавлено.

В ряде работ было подвергнуто сомнению само существование преференса в реальных облучаемых материалах. Так Naudorf [10], проводя тонкие диффузионные эксперименты на металлах показал, что в свободно мигрирующих дефектах содержится одинаковое количество вакансий и интерстиций, не оставив при этом места для преференса. Такое же заключение сделал и Abromeit [11] исследуя структуры, образующиеся в облученных материалах.

Следует остановиться также на вопросе о пространственной локализации мест зарождения пор. Согласно классическим преференциальным механизмам зарождения пор, они должны быть непосредственно связаны с дислокациями. В монографии Черняевой и др. приведено множество примеров нахождения пор у дислокационных линий, в основном, в сильно набухших материалах [5]. Однако, эти примеры характеризуют скорее фазу развития, а не зарождения пористости в интервале температур облучения выше максимума набухания. В этих условиях порообразование начинается при дозах порядка десятков смещений на атом. В условиях «низкотемпературного» (100-200⁰C) облучения поры начинают образовываться в чистых металлах при дозах в тысячи раз ниже. Именно здесь, при пористости сотые доли процента лучше всего наблюдать особенности их зарождения. Такие исследования были проведены в работе [12]. Они показали, что зарождение пор начинается в областях свободных от дислокаций, в бездефектных областях кристалла. По мнению авторов это ставит под сомнение роль преференса в зарождении пор. Этот результат соответствует предложенной авторами модели зарождения пор в идеальных областях кристалла за счет обратных мартенситных превращений [1].

Возвращаясь к проблеме порообразования в рамках представлений о дислокационном преференсе, отметим еще один важный момент. Дело в том, что наряду с вакансиями к зародышам пор идет огромный поток междоузельных атомов. Учет этого обстоятельства приводит к тому, что зарождение пор может иметь место лишь при значениях дислокационного преференса выше 10% [13]. Таким образом, если верны общепринятые значения преференса на уровне 1-2 %, то возникновение вакансионных пор под облучением, по мнению авторов этой работы- невозможно.

Еще одним фактором, снижающим вероятность работы дислокационного преференса является образование атмосфер из примесей на дислокациях. Norrís [14] показал, что концентрация примесей в облученном материале на уровне 0,02 может полностью подавить преференс через влияние на упругое поле дислокации.

Следует остановиться еще на одном важном аспекте взаимодействия точечных дефектов с дислокациями.

Дело в том, что поглощение дефектов дислокациями происходит на ступеньках и порогах. Энергия образования порога напрямую связана с шириной расщепления дислокации, т.е. с ее энергией дефекта упаковки. В ряде работ, на целом ряде материалов, удалось показать [15,16], что облучение, газообразные продукты ядерных реакций и, в частности, гелий могут приводить к значительному увеличению расщепления дислокаций и снижению энергии дефекта упаковки. Таким образом, под облучением может значительно затрудняться процесс поглощения точечных дефектов за счет трудности с образованием порогов. Трудность зарождения порогов, и более прямые (по сравнению с исходной структурой) дислокации наблюдались в работах [17,18].

Таким образом, и существование преференса, и общепринятый механизм образования вакансионных пор в условиях вакансионной пересыщенности в реальных облучаемых сплавах находится под большим сомнением.

РОЛЬ ВАКАНСИЙ В РАЗРУШЕНИИ МАТЕРИАЛОВ

Концентрация неравновесных вакансий в зависимости от напряжения и температуры в локальном объеме может быть найдена из формулы [19]:

$$C = C_0 \exp(\sigma_n V_a / kT),$$

где σ_n (или просто P – давление) и T – соответственно, напряжение и температура, C_0 – равновесная концентрация вакансий в ненагруженном кристалле, V_a – атомный объем, k – постоянная Больцмана. Для области сжатия следует брать $(+\sigma_n)$, для растяжения – $(-\sigma_n)$. Следовательно, в металлах и сплавах знак действующих внутренних гидростатических напряжений определяется состоянием вакансионной подсистемы: в любой системе с образованием в ней вакансионного пересыщения действует гидростатическое сжатие, а если концентрация вакансий ниже равновесного уровня, – возникает гидростатическое растяжение.

Известно, что гидростатическое сжатие подавляет порообразование [19], т.е. вакансионное пересыщение налагает запрет на образование вакансионных комплексов. В условиях растяжения вакансионная недостаточность, в соответствии с классическими теориями [5,20] также не позволяет образовываться комплексам. И в том и в другом случае сама вакансионная подсистема налагает запрет на диффузионный механизм образования пор. В этом и заключается «парадокс» порообразования.

Тем не менее, хрупкое разрушение металлов (т.е. разрушение без пластической деформации, куда следует относить и образование пор и микротрещин), наблюдается в условиях действия именно всесторонних растягивающих напряжений, т.е. в условиях вакансионной недосыщенности и, следовательно, в противоречии с существующими теориями.

Характерной особенностью механизмов порообразования является его «взрывной» характер, получивший свое название благодаря экспериментальному определению времен зарождения пор и микротрещин в процессе деформации, составляющих порядка 10^{-6} с [20]. Этот факт, по мнению авторов, является одним из главных аргументов против гомогенного механизма их зарождения. Образование зародышей пор (трещин) размером 0.01-0.1 мкм за такие времена требует мгновенного объединения тысяч вакансий, которым неоткуда взяться (в соответствующих объемах материалов) даже при максимально возможных их концентрациях, будь то закалка, облучение, или интенсивная деформация. Во всех указанных процессах предельная концентрация вакансий в металлах не превышает 10^{-3} .

Существование всех этих факторов приводит к мысли об альтернативных механизмах зарождения пор в облучаемых материалах.

На рис.1 представлена петля гистерезиса $\gamma \rightleftharpoons \alpha$ фазовых превращений, построенная для системы железо-углерод [1]. В верхнем и нижнем углах петли изображены по два характерных силовых вектора σ_t и σ_{min} , каждый из которых отвечает напряжениям чистого сдвига и минимальным напряжениям образования мартенсита соответственно. Если верхний угол петли описывает процессы прямых мартенситных превращений, то нижний – отвечает за обратные превращения.

Поскольку петля обладает угловой симметрией (поворот петли вокруг центральной оси на 180° приводит к полному совпадению всех ее точек), то соответствующие силовые вектора равновелики, но в каждой паре $\sigma_t > \sigma_{min}$. Это означает, что как только в кристалле начинает формироваться тензор трехосных сжимающих или растягивающих напряжений, так сразу возникают условия, подавляющие пластическую деформацию и облегчающие мартенситные превращения.

Плотность упаковки α и γ фаз железа различна. Поэтому фазовые γ - α (в том числе и мартенситные) превращения протекают с изменением объема. Объем фазового несоответствия может быть нормирован на объем вакансии. В процессе обратного мартенситного превращения этот объем должен выделяться в виде вакансий или их комплексов. Поскольку образование мартенсита – процесс коллективный, то и объем может выделяться в виде вакансионного комплекса.

Если в общепринятых подходах к эволюции дефектной структуры, например, под облучением базовым событием является выбивание атомов из их позиций в решетке, то для образования вакансии в процессе МП достаточно смещения группы атомов на долю параметра решетки. Такой подход, позволяет отказаться от диффузионных [20] и дислокационных [21] моделей зарождения пор и трещин, и оставляет надежду на совершенно естественный способ образования зародышей трещин и пор – через коллапс упругих деформаций растяжения с созданием локализованных состояний.

Представления о вакансиях только как о точечных дефектах обедняет их природу и создает проблемы, например, при объяснении процессов зарождения вакансионных пор и трещин. На самом деле, вакансии – составная часть свободного объема кристаллической решетки. При этом вакансия может находиться как в локализованном (точечный дефект и сжимающие напряжения), так и делокализованном («размазанный» дефект и растягивающие напряжения) состоянии.

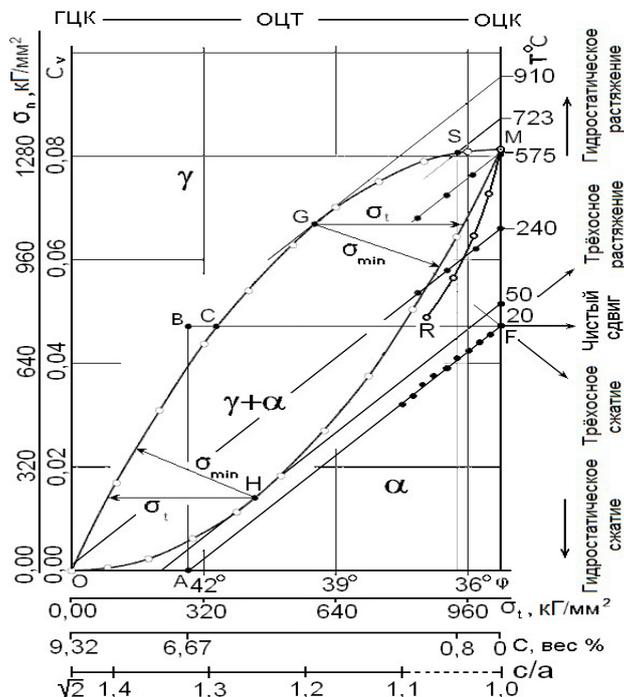


Рис.1. Петля гистерезиса ГЦК – ОЦК фазовых превращений в чистом железе[1].

О дуализме вакансий при криогенных температурах и возможности существования «размазанных» вакансионных дефектов (дефектонов) впервые было сказано в работе [22], при обычных температурах – декларировано в нашей работе [1].

Образование вакансии неразрывно связано с принципом постоянства плотности внутренней энергии [23]. Указанный принцип заключается в том, что в приращенном объеме при расширении конденсированных систем вследствие нагревания должно выполняться условие: плотность внутренней энергии p_0 остается постоянной.

$$p_0 = Q_c / V_0,$$

где Q_c – энергия сублимации, V_0 – объем моля вещества при абсолютном нуле.

В соответствии с этим принципом, конечным состоянием эволюции, любой неравновесной системы, поглощающей энергию извне (в частности, облучаемого кристалла), должно быть всестороннее растяжение.

Дуализм вакансий позволяет: во-первых - всегда поддерживать минимальной их концентрацию в виде точечных дефектов в металлах, во-вторых - изменять объем с изменением внутренней энергии.

С целью выяснения природы зарождения пор и трещин в неравновесных системах (закалка, облучение, деформирование) изучены механизмы образования свободного объема за счет бездиффузионных фазовых превращений мартенситного типа.

То, что образование вакансионных пор и трещин по механизму МП энергетически более выгодно, чем диффузионно, подтверждают элементарные расчеты энергии образования вакансий в железе. Такие расчеты были проведены с использованием известных данных по изменению тетрагональности мартенсита в закаленных углеродистых сталях [24] и диаграммы мартенситных фазовых превращений.

Анализ полученных результатов, показал, что объемы ячеек аустенита и мартенсита увеличиваются с ростом содержания углерода в железе. Однако, объем фазового несоответствия (разность объемов аустенита и мартенсита) ΔV элементарной ячейки не зависит от содержания углерода в железе и составляет в среднем $1,015 \text{ \AA}^3$. Постоянное значение ΔV указывает на то, что существует неизменная доля объема фазового несоответствия, которая обусловлена только вакансиями.

В аустенитной фазе железа углерод не формирует тетрагональных искажений, поскольку его распределение в кристаллической решетке ни как не связано с упорядочением. Поэтому образование тетрагональных искажений и объемные изменения в аустените до превращения определяются только вакансиями, усредненная концентрация которых составляет $\approx 4,2$ об.%. (Концентрация вакансий определяется как $c_v = \Delta V / V$, где $\Delta V \approx 1,015 \text{ \AA}^3$, а V – усредненное значение объема элементарной ячейки мартенсита $V \approx 24,14 \text{ \AA}^3$).

Понятно, что такая концентрация вакансий не может быть одновременно достигнута во всем объеме материала, но локально и в плоскости образования мартенсита это вполне реально. Именно анизотропия распределения вакансий в различных плоскостях порождает тетрагональные искажения в изотропной кристаллической решетке. Об анизотропном распределении вакансий свидетельствует сама форма мартенситных кристаллов.

Таким образом, концентрация вакансий достигает максимальных значений в плотно упакованных плоскостях, что приводит систему (локально) в одно из экстремальных состояний ее внутренней энергии и последующему мартенситному превращению.

На рис.2 представлены: петля гистерезиса фазовых ГЦК-ОЦК превращений, а также графики изменения внутренней энергии вдоль верхней и нижней ветвей петли гистерезиса и ее первой производной (которая обращается в экстремуме в нуль) для идеального кристалла железа в процессе $\gamma \rightleftharpoons \alpha$ превращений. Графики демонстрируют, что внутренняя энергия, изменяясь вдоль петли, имеет два экстремума, которым отвечают напряжения около 328 и 968 кг/мм² с тетрагональностью c/a порядка 1,313 (отклонение от 1,4142) для аустенита и 1,106 (отклонение от 1) для феррита, соответственно.

Указанным тетрагональным искажениям отвечают значения относительного объема $\Delta V/V$ в среднем равное 0,021. Определенное из экспериментальных данных значение относительного объема при прямом превращении (закалка) $\Delta V/V = 0,042$. Следовательно, система окажется в экстремуме, используя примерно половину образовавшихся при закалке, вакансий. Вторая их половина уйдет на создание тензора напряжений способного реализовать мартенситное превращение.

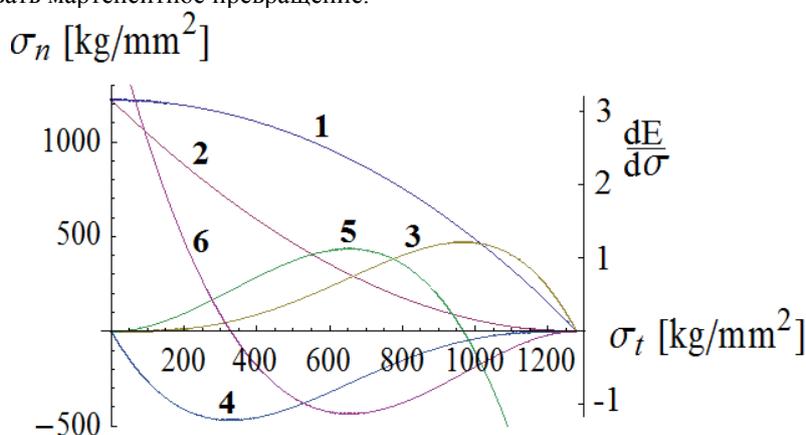


Рис.2. Петля гистерезиса - кривые 1-2. Графики, которые демонстрируют: характер изменения энергии (3,4) и производной $dE/d\sigma$ (5,6). Положения экстремумов на петле гистерезиса определяет условие $(\partial E/\partial \sigma) = 0$.

Зная объем вакансии, легко подсчитать число ячеек, мартенситное превращение в которых способно породить одну вакансию, а вычислив изменение энергии одной элементарной ячейки за счет изменения ее объема, подсчитать энергию образования одной вакансии.

Определим изменение энергии элементарной ОЦТ ячейки в результате мартенситного фазового превращения как:

$$\Delta E^* = K(\Delta V/V)^2,$$

где $K=16,8 \cdot 10^3 \text{ кг/мм}^2$ – модуль объемного сжатия, $\Delta V/V$ - изменение относительного объема аустенита при превращении его в мартенсит равное 0,042.

Расчет дает значение изменения энергии одной ОЦТ ячейки кристалла $\Delta E^* \approx 0,0036 \text{ эВ}$.

Полагая, что объем вакансии равен объему атома железа $V_v \approx 12 \text{ \AA}^3$, легко вычислить энергию образования одной вакансии при мартенситных превращениях в углеродистых сталях. Полученное значение $E_v \approx 0,04 \text{ эВ}$ в 30 раз меньше энергии образования вакансии по механизмам Шоттки или Френкеля. Теоретические оценки этих энергий для железа находятся в пределах $1,1 \div 1,45 \text{ эВ}$ [5]. Энергия образования вакансии, возникающей при МП - $E_v \approx 0,04 \text{ эВ}$, является величиной постоянной и не зависит от размера поры или трещины.

Таким образом, простейший расчет показывает, что мартенситное превращение приблизительно 11-ти элементарных ячеек ОЦТ искаженной кристаллической решетки порождает (или поглощает) свободный объем равный объему одной вакансии (в виде точечного дефекта объемом $V_v = 12 \text{ \AA}^3$) под действием гидростатических напряжений. Иначе следует понимать, что растворенная в объеме вакансии оказывается равномерно «размазанной» приблизительно по 11-и элементарным ячейкам.

Диаграмма ГЦК-ОЦК мартенситных фазовых превращений и механизмы образования мартенсита, использованные для ее построения, позволяют утверждать, что образование петель дислокаций вакансионного типа в феррите не нуждается в диффузии вакансий. Энергетически более выгодно их образование за счет сдвиговых деформаций, возникающих при образовании мартенсита. В этом случае образующийся мартенсит – фаза более плотная, чем α -матрица и прямо при сдвиге над объемом превращения возникают растяжения подобные тем, которые создает петля дислокации вакансионного типа.

Считая, межатомное расстояние порядка 3Å , можно ожидать, что мартенситная прослойка толщиной $30\div 35\text{Å}$ породит полную петлю дислокации. Энергия образования такой петли с радиусом 6Å , состоящей приблизительно из 40 вакансий не превысит 1,6 эВ, что намного ниже энергии образования петель того же размера, полученной в рамках классической модели упругого континуума ($30\div 40$ эВ) [25].

Зная критический радиус зародыша вакансионной поры, можно оценить размер мартенситной фазы способной его образовать. Следуя литературным экспериментальным данным [25] полагаем, что радиус стабильного зародыша равен $\approx 6\text{Å}$. Тогда, объем поры равен $\approx 905\text{Å}^3$, число вакансий, его образующих – 75, а объем мартенситного кристалла, который порождает такую пору $\approx 21720\text{Å}^3$. Энергия образования поры из такого числа вакансий $E_p = 0,04 \times 75 = 3\text{эВ}$. Это значение на порядок ниже значения пороговой энергии диффузионного образования поры, которая оценивается в $30 \div 35$ эВ [25]. Чтобы преодолеть этот порог диффузионно, такая пора должна образоваться флуктуационно из 75 вакансий в виде точечных дефектов, что практически не реально [26]. Механизм образования пор на мартенситных фазовых превращениях позволяет легко преодолеть энергетический барьер в 3эВ за счет бездиффузионного коллапса упругих деформаций растяжения.

Считается, что для полного разрыва межатомных связей (образование трещины) достаточно удалить атомы на расстояние равное двум параметрам кристаллической решетки. Обратный переход с образованием мартенситной пластины толщиной всего в $70\div 75\text{Å}$ приведет к тому, что такая трещина возникнет вдоль всей межфазной границы.

Полученные в работе результаты находят экспериментальное подтверждение при изучении структурно фазовой эволюции корпусных сталей. Исследования показали наличие ассоциаций нано пор и частиц ГЦК фазовых выделений на медной основе в облученных корпусных сталях (ОЦК) и модельных системах, образовавшихся по механизму бездиффузионных превращений мартенситного типа [27,28]. Естественно, что этот процесс должен приводить к эффекту размагничивания корпусов, что и наблюдается экспериментально. Например, в работе [29], выполненной на корпусной стали 15X2НМФА реакторов ВВЭР 1000, облученной до дозы менее 0,1 с.н.а показано, что остаточная намагниченность уменьшается после облучения на 48%. Если представленный подход является правильным, то в сталях аустенитного класса должна наблюдаться противоположная картина: прямое мартенситное превращение должно приводить к увеличению намагниченности стали. Проведены нами исследования магнитных характеристик реакторной стали ОХ16Н15МЗБ облученной до того же уровня повреждений ($10^2\div 10^1$ с.н.а.), что и корпусные стали показали, что происходит существенное, в разы, увеличение остаточной намагниченности в результате облучения [30].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С целью выяснения природы зарождения пор и трещин в неравновесных системах (закалка, облучение, деформирование) изучены механизмы образования свободного объема за счет бездиффузионных фазовых превращений мартенситного типа. Показано, что упругая объемная деформация 11-ти элементарных ОЦТ ячеек железа на 4,2% приводит к образованию одной структурной вакансии.

Полная объемная деформация является суммой примерно равных частей в 2,1%: одна из них отвечает за объемные изменения за счет сдвига, а вторая за объемные изменения под действием гидростатики.

Определена энергия активации образования вакансий по этому механизму, составившая приблизительно 0,04эВ, что в тридцать раз ниже, чем при образовании вакансий по механизмам Шоттки или Френкеля.

Определена энергия образования вакансионной поры критического размера (радиус 6Å) приблизительно равная 3эВ.

Показано, что мартенситная прослойка толщиной $30\div 35\text{Å}$, возникающая при обратном превращении, порождает петлю дислокации вакансионного типа. Если толщина мартенситной прослойки оказывается порядка $70\div 75\text{Å}$, в металле образуется трещина или пора. Из этого следует, что мощность мартенситной прослойки как источника вакансий (или междоузлий) определяется ее толщиной.

Представленные в работе данные свидетельствуют об энергетической выгоде образования зародышей пор по механизму обратных мартенситных превращений по сравнению с диффузионным механизмом, в котором энергия образования поры критического размера составляет десятки электрон-вольт.

Особо следует подчеркнуть, что мартенситные фазовые превращения – не только механизм образования пор и трещин. Они являются также эффективным источником дислокационных петель как вакансионного, так и междоузельного типа.

Фактором, определяющим степень охрупчивания любой неравновесной системы, является рост тетрагональных искажений кристаллической решетки в условиях формирования тензора всесторонних растягивающих напряжений. Любая ОЦК система окажется в хрупком состоянии, когда тетрагональные искажения в ней достигнут экстремального значения. Наличие вязкой составляющей в хрупком разрушении объясняется «локализацией» объема, в котором формируется тензор гидростатического растяжения. Чем больше объем превращения, тем меньше вязкая составляющая.

Указанная выше «локализация» коренным образом отличается от той, которая используется в так называемом «локальном подходе» [20], поскольку связана с локализацией хрупкого разрушения, а не с

«локализацией пластической деформации». Образование петли дислокации вакансионного типа приводит к локальному росту свободного объема и увеличению внутренней энергии. Ее значение в окрестности петли стремится к Q_c . Образование второго слоя вакансий при толщине мартенситной прослойки больше 70\AA приводит к тому, что отношение E/V в этом локализованном объеме становится больше Q_c/V_0 и кристалл локально разрушается, образуя пору или трещину.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Laptev I.N., Parkhomenko A.A. Fazovye prevrascheniya i hrupkost' sistemy «zhelezo-vakansii» v poljah uprugih naprjazhenij // Uspehi fiziki metallov. – 2010. – T.11, vyp.1. – С.5-50.
2. Laptev I.N., Parkhomenko A.A. O vozmozhnosti obrazovaniya martensita v austenitnykh nerzhavajuwih staljah pod oblucheniem // Voprosy atomnoj nauki i tehniki. Serija: «Fizika radiacionnykh povrezhdenij i radiacionnoe materialovedenie». – 2010. – No.4(82). – С.143.
3. Laptev I.N., Parkhomenko A.A., Neklyudov I.M. The new approach to the description of phase transformation and fragility of strongly nonequilibrium systems // The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”. – 2011. – No.955. – P.98-107.
4. Neklyudov I.M., Laptev I.N., Parkhomenko A.A., Voyevodin V.N., Ozhigov L.S., Bryk V.V. Kooperativnie mody radiatsionnogo okhrupchivaniya // Voprosy atomnoj nauki i tehniki. Serija: «Fizika radiacionnykh povrezhdenij i radiacionnoe materialovedenie». – 2012. – No.5 (81). – S.51-61.
5. Cherniaeva T.P., Zelensky V.F., Neklyudov I.M. Radiation defects and swelling of materials. - Kiev: Naukova Dumka, 1988.- 296p.
6. Brailsford A.D., Bullough R. Void growth and its relation to intrinsic point defects properties // Journal of Nuclear Materials - 1978. – Vol. 69/70. – P.434-450.
7. Singh B.N., Foreman A.J.E. An assessment of void nucleation by gas atoms during irradiation // Journal of Nuclear Materials. – 1981. – Vol.103. – P.1469-1471.
8. Glowinsky L.D., Fiche C. Void nucleation and growth in copper during irradiation // Journal of Nuclear Materials. – 1976. – Vol.61. – P.29-37.
9. Sindelar L.R., Dodd R.A., Kulcinsky G.L. Damage analysis and fundamental Studies // Quarterly Progress Report. – 1985. – DOE/ER -0046/21. – P.148-159.
10. Naundorf V. On origin of freely migrating defects in ion and neutron irradiated metals // Journal of Nuclear Materials. – 1991. – Vol.182. – P.254-261.
11. Abromeit C. Structure of irradiated metals // Int. J. Mod. Phys. – 1989. – Vol.B3. – P.1301-1319.
12. Singh B.N., Zinkle S.J. Defect accumulation in pure fcc metals in the transient regime: a review // Journal of Nuclear Materials. – 1993. – Vol.206. – P.212-229.
13. Golubov S.I., Kaizepkaya E.N. Vzaimodeistvie vakansionnykh skopleniy s tochechnymi defektami // EVM i modelirovanie defektov v kristalakh. – Leningrad: LIYAF. – 1982. – P.76-78.
14. Norris D.I.R. Defect evolution in metals during neutron irradiation // AERE Report. – 1975. – R-7934. – P.134-150.
15. Parkhomenko O.O. K voprosu o vliyaniy oblucheniya na energiyu defekta upakovki // Nauchnie vedomosti (Belgorod State University). – 1998. – No.1(6). – P.75-80.
16. Gerasimenko V.I., Mikhailovsky I.M., Neklyudov I.M., Parkhomenko O.O., Velikodnaya O.A. Changes of the grain boundary structure induced by helium // Tech.Phys. – 1998. – Vol.43. – P.803-808.
17. Shimomura Y., Mukouda I. Defect structures in irradiated copper // Journal of Nuclear Materials. – 2000. – Vol.283-287. – P.249-257.
18. Porolo S.I., Konobeev Yu.V., Kruglov A.S. Stress-effect dislocation development of stainless steel during neutron irradiation / Proc.of 19-th Int.Conf. “Effects Radiation on Materials”. – USA, PA, 2000. – P.850-861.
19. Geguzin Ja.E. Diffuzionnaya zona. – M.: Nauka, 1979. – 343s.
20. Chermenskoy P.G., Slezov V.V., Betehtin V.I. Pory v tverdom tele. – M.: Energoatomizdat, 1990. – 376s.
21. Kotrechko S.A., Meshkov Yu.Ja. Predelnaya prochnost. – Kiev: Naukova Dumka, 2008. – 293s.
22. Lifshitz I.M., Andreev A.F. Kvantovaya teoriya defektov v kristalakh // JETP. – 1969. – Vol.56. – P.2057-2068.
23. Meshkov Yu.Ja. Prinzip sohraneniya plotnosti vnutrenney energii // Metallofizika i noveishie tehnologii. – 1996. – Vol.18. – No.5. – S.60-76.
24. Guliaev A.P. Metallovedenie. – M.: Oborongiz, 1963. – 185s.
25. Cuddy L.J., Manahan M.P., Brauer G., Martinko J. Ductile fracture mechanisms in reactor pressure vessel steel / Proc.17 Int.Conf. “Effects Radiation on Materials”, ASTM STP 1270. – 1996. – P.637-659.
26. Si-Ahmed A., Wolfer W.G. Effects Radiation on Materials, ASTM STP 870. – 1982. – P.1008-1017.
27. Othen P., Jenkins M.L., Smith G., Phythian W.J. Transmission electron microscopy investigation of the structure of copper precipitates in Fe-Cu and Fe-Cu-Ni // Philosophical Magazine Letters. – 1991. – Vol.64. – P.383-389.
28. Lambrecht M., Almazouzi A. Positron annihilation study of neutron irradiated model alloys and of a reactor pressure vessel steel // J.Nucl. Mater. – 2009. – Vol.385. – P.334-338.
29. Gorkunov E.S., Nichiporuk A.P., Somova V.M., Levit V.I. O vozmozhnosti kontrolya strukturnogo sostoyaniya obluchenoj korpusnoy stali 15X2HMΦA magnitnymi metodami // Defektoskopia. – 1993. – No.7. – P.62-66.
30. Azhazha V.M., Desnenko V.A., Ozhigov L.S., Parkhomenko A.A., Svechkarev V.N., Fedorenko A.V. Izmernenie magnitnogo sostoyaniya austenitnykh staley pri obluchenii // Proc. XVII Int.Conf. “Physics of the radiation phenomena and reactor material science” Ukraine (Alushta, 3-7.09.2006.), Kharkov. – 2006. – P.121-122.

(blank line)

(blank line)

PACS: Here you must specify PACS codes

(blank line)

INSTRUCTIONS FOR PREPARING MANUSCRIPT (TITLE)

(blank line)

N.N. Author¹, N.N. Co-author(s)²

¹*Affiliation*

²*Affiliation (if different from Authors affiliation)*

e-mail: corresponding_authors@mail.com

Received January 14, 2014

(blank line)

Each paper must begin with an abstract. The abstract should be typed in the same manner as the body text (see below). Please note that these Instructions are typed just like the manuscripts should be. The abstract must have at least 500 phonetic symbols, supplying general information about the achievements, and objectives of the paper, experimental technique, methods applied, significant results and conclusions. Page layout: the text should be printed on the paper A4 format, at least 3 pages, with margins of: Top - 3, Bottom, Left and Right - 2 cm. The abstract should be presented in English (only for foreign authors), Ukraine and Russian.

KEYWORDS: there, must, be, at least, 5 keywords

(blank line)

This is introduction section. This paper contains instructions for preparing the manuscripts. The text should be prepared in .doc format (using MS Word).

(blank line)

INSTRUCTIONS

The text should be typed as follows:

- title: Times New Roman, 12 pt, ALL CAPS, bold, 1 spacing, centered;
- authors: name, initials and family names; Times New Roman, 12 pt, bold, 1 spacing, centered;
- affiliation(s): Times New Roman, 9 pt, italic, 1 spacing, centered;
- abstract: Times New Roman, 9 pt, 1 spacing, justified;
- body text: Times New Roman, 10 pt, 1 spacing, justified; paragraphs in sections should be indented right (tabulated) for 0.75 cm;
- section titles: Times New Roman, 10 pt, bold, 1 spacing, centered, without numbering, one line should be left, blank above section title;
- subsection titles: Times New Roman, 10 pt, bold, 1 spacing, centered, without numbering in accordance to the section (see below), one line should be left blank above subsection title;
- figure captions: width of the figure should be 85 or 170 mm, figures should be numbered (Fig. 1) and titled below figures using sentence format, Times New Roman, 9 pt, 1 spacing, centered (if one line) or justified (if more than one line); one line should be left blank below figure captions;
- table captions: width of the table should be 85 or 170 mm, tables should be numbered (Table 1.) and titled above tables using sentence format, Times New Roman, 10 pt, 1 spacing, centered (if one line) or justified (if more than one line), tables should be formatted with a single-line box around the outside border and single ruling lines between rows and columns; one line should be left blank below tables;
- equations: place equations centered, numbered in Arabic (1), flush right, equations should be specially prepared in MathType; one line should be left blank below and above equation.

(blank line)

Additional instructions

Numerated figures and tables should be embedded in your text and placed after they are cited. Only black and white drawings and sharp photographs are acceptable. Letters in the figures should be 3 mm high. The figures should be presented in one of the following graphic formats: jpg, gif, pcx, bmp, tif.

(blank line)

REFERENCES

References should be numbered in the order of referring in the text, e.g. [1], [2-5], etc. Do not superscript your reference numbers. Cite references as in journal format. The full references should be listed in numerical order of citation in the text at the end of the paper (justified), Times New Roman, 9 pt, 1 spacing. References should be given in the following form:

Journals

1. Holzwarth G., Eckart G. Fluid-dynamical approximation for finite Fermi systems // Nucl. Phys. - 1979. - Vol. A325. - P.1-30.

Books

2. Bertsch G.F., Broglia R.A. Oscillations in finite quantum systems. Ch. 6. - Cambridge: Cambridge University, 1994. - 150 p.

Chapters

3. Van der Woude A. The electric giant resonances // Electric and magnetic giant resonances in nuclei / Ed. by J. Speth. - Singapore: World Scientific P.C., 1991. - P. 99-232.

Conference or symposium proceedings

4. Smolanzuk R., Skalski J., Sobiczewski A. Masses and half-life of superheavy elements // Proc. of the International Workshop 24 on Gross Properties of Nuclei and Nuclear Excitations / Ed. by H. Feldmeier et al. - GSI, Darmstadt, 1996. - P.35-42.

Special Notes

1. Use International System of Units (SI system). 2. It is undesirable to use acronyms in the titles. Please define the acronym on its first use in the paper. 3. Refer to isotopes as ¹⁴C, ³H, ⁶⁰Co, etc.

Наукове видання

СХІДНО-ЄВРОПЕЙСЬКИЙ ФІЗИЧНИЙ ЖУРНАЛ

Том 1 Номер 3

EAST EUROPEAN JOURNAL OF PHYSICS

Volume 1 Number 3

Збірник наукових праць
англійською, українською, російською мовами

Коректор - Коваленко Т.О.
Технічний редактор - Гірник С.А.
Комп'ютерне верстання - Гірник С.А.

Підписано до друку 4.06.2014. Формат 60x84 /8. Папір офсетний. Друк
ризографічний.

Ум. друк. арк. 18. Обл.-вид. арк. 14,4.
Тираж 300 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