

Volume 4 • Number 2 • 2017

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 4 · Number 2

2017

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 V.N. 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 (May 29, 2017, Protocol No. 7). EEJP registered by the order of Ministry of Education of Ukraine № 747 of 07.13.2015, and is included in the list of scientific specialized editions of Ukraine, which can be published results of dissertations for the degree of doctor and candidate of physical and mathematical sciences.

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

Dovbnya 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, V.N. Karazin Kharkiv National University

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

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

E-mail: eejp@karazin.ua,

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

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

ORIGINAL PAPERS

- Models of Hamiltonian and Low-Frequency Spectra of Collective Excitations in Spin $S = 1$ Magnetics** 4
A.V. Glushchenko, M.Y. Kovalevsky
- Increase of Amplitude of Accelerating Wakefield, Excited by Sequence of Short Relativistic Electron Bunches in Plasma, at Magnetic Field Use** 11
D.S. Bondar, I.P. Levchuk, V.I. Maslov, I.N. Onishchenko
- Effect of Amyloid Fibrils on Electrokinetic Properties of Lipid Vesicles** 19
U. Tarabara, K. Vus, S. Girnyk, N. Kamneva, O. Lavryk, M. Mikhailyuta, V. Trusova, G. Gorbenko
- Dynamics of Bose-Einstein Condensate with Account of Pair Correlations** 29
Yu.M. Poluektov, A.M. Arslanaliev
- Clinoptilolite with Cesium Immobilisation to Potassium Magnesium Phosphate Matrix** 37
S.Yu. Sayenko, V.A. Shkuropatenko, N.P. Dikiy, R.V. Tarasov, K.A. Ulybkina, O.Y. Surkov, L.M. Litvinenko
- Low Temperature Deformation and Strength of Polyimide Films Due to Thickness and Deformation Speed** 44
V.A. Lototskaya, L.F. Yakovenko, E.N. Aleksenko, V.V. Abraimov, Wen Zhu Shao
- Measurement of the Main Characteristics of PuBe and $^{238}\text{PuBe}$ Neutron Sources Using Bonner Sphere Spectrometer With A ^3He -Counter** 53
V.B. Ivanskyi, O.N. Letuchyy, A.N. Orobinskyi, H.V. Siroko
- Study of Plastic Deformation of Cadmium** 66
I.I. Papirov, P.I. Stoev, G.P. Kovtun, A.P. Shcherban, D.A. Solopikhin, T.Yr. Rudycheva
- Maximum Temperature in an Ideal Greenhouse** 78
O. Ivashtenko

PACS: 75.10.-b

MODELS OF HAMILTONIAN AND LOW-FREQUENCY SPECTRA OF COLLECTIVE EXCITATIONS IN SPIN $S = 1$ MAGNETICS

A.V. Glushchenko, M.Y. Kovalevsky

*Kharkov Institute of Physics and Technology
Academicheskaya 1, Kharkov, 61108, Ukraine*

E-mail: glushchenko.ant@gmail.com

Received March 27, 2017

The paper studies the dynamic description of non-equilibrium processes in single-sublattice and multisublattice magnets with the spin $s=1$. In case of magnets with the spin $s=1$ and $SU(3)$ symmetry of the exchange interaction, there are eight magnetic integrals of motion: the spin and the quadrupole matrix. If there are multiple sublattices, the number of additional magnetic quantities characterizing the state increases to sixteen. The presence of the Casimir invariants makes it possible to reduce the number of independent degrees of freedom. Exchange energy models are presented in terms of Casimir invariants corresponding to $SO(3)$ or $SU(3)$ symmetry groups for all four types of magnetic degrees of freedom. For the homogeneous part of the exchange energy, we have found conditions for the existence of local minima, which correspond to equilibrium values of the magnet. Along with the known waves (quadrupole and Goldstone – for the spin nematic), spectra of collective excitations that take into account ferro-quadrupole excitation, quadro-nematic, quadro- antiferromagnetic, and antiferro-nematic waves excitation, are also obtained. In the case of many-sublattice magnetic systems, we have shown that the selected form of the homogeneous energy model allows us to find possible magnetic orderings and to investigate them for stability.

KEY WORDS: $SU(3)$ symmetry, magnet, spin, exchange interaction, Casimir invariant, spectra.

МОДЕЛІ ГАМІЛЬТОНІАНА І НИЗЬКОЧАСТОТНІ СПЕКТРИ КОЛЕКТИВНИХ ЗБУДЖЕНЬ У МАГНЕТИКАХ ЗІ СПИНОМ $S = 1$

А.В. Глушенко, М.Ю. Ковалевський

*Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»
вул. Академічна, 1, м. Харків, 61108, Україна*

В роботі розглянуті питання динамічного опису нерівноважних процесів в однопідгратковому та багатопідграткових магнетиках зі спіном $s = 1$. У разі магнетиків зі спіном $s = 1$ і $SU(3)$ симетрії обмінної взаємодії магнітних інтегралів руху вісім: це спин і квадрупольна матриця. За наявності кількох підграток, число магнітних величин, що характеризують стан рівноваги, збільшується до шістнадцяти. Наявність інваріантів Казимира дозволяє зменшити число незалежних ступенів свободи. Моделі обмінної енергії представлені в термінах інваріантів Казимира, що відповідають групам $SO(3)$ або $SU(3)$ симетрії, для всіх чотирьох типів магнітних ступенів свободи. Для однорідної частини обмінної енергії знайдені умови існування локальних мінімумів, які відповідають рівноважним значенням магнетика. Поряд з відомими хвилями (квадрупольними і голдстоунівськими для спінового нематика), також отримані іншого виду спектри колективних збуджень, які описують феро-квадрупольне збудження, а також quadro-нематичні, quadro-антиферромагнітні і антиферро-нематичні хвилі. Нами показано, що у разі багатопідграткових магнітних систем вид однорідної моделі енергії дозволяє знайти можливі магнітні впорядкування і досліджувати їх на стійкість.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: $SU(3)$ симетрія, магнетик, спин, обмінна взаємодія, інваріант Казимира, спектри

МОДЕЛИ ГАМІЛЬТОНІАНА И НИЗКОЧАСТОТНЫЕ СПЕКТРЫ КОЛЛЕКТИВНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В МАГНЕТИКАХ СО СПИНОМ $S=1$

А.В. Глушенко, М.Ю. Ковалевский

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»
ул. Академическая, 1, г. Харьков, 61108, Украина*

В работе рассмотрены вопросы динамического описания неравновесных процессов в одноподрешеточном и многоподрешеточном магнетиках со спином $s=1$. В случае магнетиков со спином $s=1$ и $SU(3)$ симметрии обменного взаимодействия магнитных интегралов движения восемь: это спин и квадрупольная матрица. Если имеется несколько подрешеток, то число магнитных величин, характеризующих состояние, увеличивается до шестнадцати. Наличие инвариантов Казимира позволяет уменьшить число независимых степеней свободы. Модели обменной энергии представлены в терминах инвариантов Казимира, отвечающих группам $SO(3)$ или $SU(3)$ симметрии, для всех четырех типов магнитных степеней свободы. Для однородной части обменной энергии найдены условия существования локальных минимумов, которые отвечают равновесным значениям магнетика. Наряду с известными волнами (квадрупольная и голдстоуновская для спинового нематика), также получены иного вида спектры коллективных возбуждений, которые описывают феро-квадрупольное возбуждение, а также quadro-нематические, quadro-антиферромагнитные и антиферро-нематические волны. Нами показано, что в случае многоподрешеточных магнитных систем выбранный вид однородной модели энергии позволяет найти возможные магнитные упорядочения и исследовать их на устойчивость.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: $SU(3)$ симметрия, магнетик, спин, обменное взаимодействие, инвариант Казимира, спектры

The description of collective properties of magnets with the spin of the structural element of the medium $s>1/2$ is of great physical interest due to the emergence of new magnetic states and their expected practical application. The

experimental observation of the quadrupole phase [1-3] and spin nematic phase [4] gave a new impetus to the interest in this area of magnetism. Theoretical studies of such multiparticle objects use different concepts and approaches. In the description of the basic magnetic state, a bilinear-biquadratic Hamiltonian [5-8], which is the functional of site sublattice spins, is widely used. In the description of magnets with the spin $s=1$ and $SU(3)$ symmetry, another approach is possible, in which the quantity in terms of which the Hamilton operator is possible, is the site generator of this symmetry, represented in the Weyl or Racah basis [9,10]. The derivation of dynamic equations of magnets with the spin $s=1$ for the single-sublattice case in the Racah basis and its relation to the bilinear-biquadratic Hamiltonian are traced in [8,11]. In [12], dynamic equations were obtained in the Weyl basis, both for the single-sublattice and multisublattice magnets with the spin $s=1$. The relationship between both bases and corresponding equations is considered in [13].

In the study of low-frequency phenomena in magnets, the idea of a spontaneous breaking of a symmetry of the statistical equilibrium state is quite seminal [14]. Using an analogy between magnetic systems of the “easy plane” type and superfluid liquids, an approach was proposed in [15] that made it possible to formulate equations of motion for uniaxial magnets with spontaneous symmetry breaking with respect to spin rotations around the anisotropy axis. In the case of multisublattice magnets with the spin $s=1/2$, the idea of spontaneous symmetry breaking in the phenomenological approach was used in [16-18]. From the point of view of the symmetry phenomenological approach, any magnetic structure of magnets with the spin $s=1/2$ can be characterized by no more than six degrees of freedom. Three of them can be conveniently chosen in the form of the spin density, and the remaining three quantities have the physical meaning of the order parameter. We note that only those degrees of freedom of the magnet, which slowly vary in space, are essential in the dynamic description of the low-frequency case. Therefore, the use of the Landau-Lifshitz equation in the low-frequency case for multisublattice magnets is poorly justified, since spins of sublattices are not approximate integrals of motion due to a strong inter lattice exchange interaction. The number of macroscopic magnetic degrees of freedom in this approach is not directly related to the number of sublattices. An essential role belongs to symmetry considerations of the exchange interaction, the equilibrium state, and the residual symmetry of the equilibrium state in the sense of the concept of quasi-averages. In case of magnets with the spin $s=1$ and $SU(3)$ symmetry of the exchange interaction, there are eight magnetic integrals of motion: the spin and the quadrupole matrix. If there are multiple sublattices, the number of additional magnetic quantities characterizing the state increases. In case of a complete symmetry breaking of the equilibrium state, their number does not exceed eight parameters. Therefore, the total number of magnetic degrees of freedom does not exceed sixteen. Due to the complexity of the magnetic object studied, we use the continuum approximation, in which there are no site spins.

Purpose of this paper is to describe the basic state of the magnet with spin $s = 1$ in the case of one or more sublattices, as well as to study the explicit form of the exchange energy model constructed from Casimir invariants for the Poisson bracket algebra of magnetic degrees of freedom corresponding to the $SU(3)$ and $SO(3)$ symmetry of the interaction and to find the spectra of collective excitations, near the ferro-quadrupole state, quad-nematic, antiferromagnetic and antiferro-nematic states.

DEGREES OF FREEDOM IN MAGNETS WITH THE SPIN $S=1$

In accordance with the approach [12], in order to construct the Hamiltonian mechanics of magnets with the spin $s=1$, we introduce Hermitian 3×3 matrices $b_{\alpha\beta}$ and $a_{\alpha\beta} - (\hat{a} = \hat{a}^+, \hat{b} = \hat{b}^+)$, which are canonically conjugate quantities. This means that the following Poisson brackets are valid:

$$\{b_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), b_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = 0, \quad \{a_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), a_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = 0, \quad \{b_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), a_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = -\delta_{\alpha\rho} \delta_{\beta\gamma} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}'). \quad (1)$$

We connect these matrices with physical variables, which are required for constructing the dynamics of magnets with the spin $s=1$. To this end, we introduce the Hermitian and traceless matrix

$$\hat{g}(\mathbf{x}) \equiv i[\hat{b}(\mathbf{x}), \hat{a}(\mathbf{x})]. \quad (2)$$

This quantity has the physical meaning of the $SU(3)$ symmetry generator density. Using the definition (2) and formula (1), we find the Poisson brackets for this matrix:

$$i\{g_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), g_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = (g_{\gamma\beta}(\mathbf{x})\delta_{\alpha\rho} - g_{\alpha\rho}(\mathbf{x})\delta_{\gamma\beta})\delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}'). \quad (3)$$

Formulas (1),(2) allow us to obtain Poisson brackets for matrices $\hat{a}(\mathbf{x})$ and $\hat{g}(\mathbf{x})$.

$$i\{a_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), g_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = (a_{\gamma\beta}(\mathbf{x})\delta_{\alpha\rho} - a_{\alpha\rho}(\mathbf{x})\delta_{\gamma\beta})\delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}'). \quad (4)$$

It is easily seen that Poisson brackets (1),(3),(4) are compatible with the Hermitian requirements of matrices $\hat{a}(\mathbf{x})$, $\hat{g}(\mathbf{x})$ and satisfy the Jacobi identities. We note that due to (4), the equality $\{Sp\hat{a}(\mathbf{x}), g_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = 0$ is valid. Therefore,

without loss of generality, in view of the linearity of the right-hand side of (4), we can assume that $Sp\hat{\mathbf{a}}(\mathbf{x})=0$. Matrices $\hat{g}(\mathbf{x})$ and $\hat{a}(\mathbf{x})$ represent the complete set of magnetic degrees of freedom of magnets with the spin $s=1$. We introduce real magnetic degrees of freedom. They are the spin vector $\mathbf{s}(\mathbf{x})$ and the quadrupole matrix $\hat{q}(\mathbf{x})$ related to the matrix $\hat{g}(\mathbf{x})$ by the relations

$$s_\alpha = i\varepsilon_{\alpha\gamma\rho}(g_{\gamma\rho} - g_{\rho\gamma}), q_{\alpha\beta} = (g_{\alpha\beta} + g_{\beta\alpha})/2 \equiv q(e_\alpha e_\beta - \delta_{\alpha\beta}/3) + q'(f_\alpha f_\beta - \delta_{\alpha\beta}/3). \quad (5)$$

Here, q and q' are the modules of the quadrupole matrix, the vectors $d_\alpha, e_\alpha, f_\alpha = (\mathbf{d} \times \mathbf{e})_\alpha$ form an orthonormal frame. For vectors $s_\alpha(\mathbf{x})$, due to (3), (5), the following Poisson bracket is valid:

$$\{s_\alpha(\mathbf{x}), s_\beta(\mathbf{x}')\} = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} s_\gamma(\mathbf{x}). \quad (6)$$

Similarly, we find the relations

$$\{q_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), q_{\mu\nu}(\mathbf{x}')\} = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') s_\gamma(\mathbf{x}) (\varepsilon_{\gamma\alpha\nu} \delta_{\beta\mu} + \varepsilon_{\gamma\beta\mu} \delta_{\alpha\nu} + \varepsilon_{\gamma\beta\nu} \delta_{\alpha\mu} + \varepsilon_{\gamma\alpha\mu} \delta_{\beta\nu}) / 4. \quad (7)$$

The physical state of magnets with one sublattice is characterized only by the matrix $\hat{g}(\mathbf{x})$. In case of an arbitrary number of magnetic sublattices, the physical state is described by both matrices $\hat{g}(\mathbf{x})$ and $\hat{a}(\mathbf{x})$. We connect the matrix $\hat{a}(\mathbf{x})$ with real quantities by the relation $a_{\alpha\beta}(\mathbf{x}) \equiv m_{\alpha\beta}(\mathbf{x}) - i\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} n_\gamma(\mathbf{x})/2$. The vector \mathbf{n} here has the physical meaning of the order parameter of the antiferromagnetism vector. The matrix $\hat{m}(\mathbf{x})$ is symmetric and traceless. This quantity is the order parameter of the spin nematic, which we parametrize by the relation $m_{\alpha\beta} = m(k_\alpha k_\beta - \delta_{\alpha\beta}/3) + m'(l_\alpha l_\beta - \delta_{\alpha\beta}/3)$. Here m and m' are modules of the matrix \hat{m} , vectors $o_\alpha, k_\alpha, l_\alpha = (o \times k)_\alpha$ form an orthonormal frame. For order parameters, we have obtained Poisson brackets with a quadrupole matrix and a spin vector:

$$\{s_\alpha(\mathbf{x}), n_\beta(\mathbf{x}')\} = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} n_\gamma(\mathbf{x}), \quad (8)$$

$$\{n_\alpha(\mathbf{x}), q_{\beta\gamma}(\mathbf{x}')\} = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') (\varepsilon_{\alpha\beta\rho} m_{\rho\gamma}(\mathbf{x}) + \varepsilon_{\alpha\gamma\rho} m_{\rho\beta}(\mathbf{x})), \quad (9)$$

$$\{s_\alpha(\mathbf{x}), m_{\beta\gamma}(\mathbf{x}')\} = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') (\varepsilon_{\alpha\gamma\rho} m_{\rho\beta}(\mathbf{x}) + \varepsilon_{\alpha\beta\rho} m_{\rho\gamma}(\mathbf{x})), \quad (10)$$

$$\{m_{\alpha\beta}(\mathbf{x}), q_{\gamma\rho}(\mathbf{x}')\} = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') n_\gamma(\mathbf{x}) (\varepsilon_{\alpha\nu\gamma} \delta_{\beta\mu} + \varepsilon_{\beta\mu\gamma} \delta_{\alpha\nu} + \varepsilon_{\beta\nu\gamma} \delta_{\alpha\mu} + \varepsilon_{\alpha\mu\gamma} \delta_{\beta\nu}) / 4. \quad (11)$$

The complete set of magnetic degrees of freedom of magnets with the spin $s=1$ contains quantities of two types that differ in transformational properties with respect to the time reversal operation. In transformations of the reflection of time T , the antiferromagnet and spin vectors change signs: $T\mathbf{n} = -\mathbf{n}$, $T\mathbf{s} = -\mathbf{s}$. The quadrupole matrix and the order parameter of the spin nematic do not change during at time reflection operation: $T\hat{m} = \hat{m}$, $T\hat{q} = \hat{q}$.

Formulas (6)-(11) allow us to identify subalgebras of Poisson brackets and establish the dynamics of magnets with the spin $s=1$ for various cases of magnetic ordering. Case 1: the minimal subalgebra contains only the spin vector. The use of the Hamiltonian formalism and Poisson brackets (6) leads to the dynamic Landau-Lifshitz theory [19] for the spin $s=1/2$. Case 2: Poisson brackets (6),(7) allow us to describe the dynamics of normal states of multisublattice magnets and states of single-sublattice magnets with the SU(3) symmetric exchange Hamiltonian. Case 3: the set of magnetic dynamical quantities consists of the spin density $\mathbf{s}(\mathbf{x})$ and the antiferromagnet vector $\mathbf{n}(\mathbf{x})$. Poisson brackets (6),(8) form a closed subalgebra of Poisson brackets and describe the dynamics of an antiferromagnet or ferrimagnet [20]. Case 4: the spin vector $\mathbf{s}(\mathbf{x})$ and the tensor order parameter $\hat{m}(\mathbf{x})$ form a closed subalgebra of Poisson brackets (6),(10). In this case, the Hamiltonian has the exchange SO(3) symmetry. The T-even spontaneous symmetry breaking of the equilibrium state describes spin nematic states. Magnets with the spin $s=1/2$ do not possess such magnetic ordering. The dynamics for such magnets has been studied in detail in [21]. Case 5: the set of magnetic dynamical quantities consists of matrices $\hat{g}(\mathbf{x})$ and $\hat{a}(\mathbf{x})$. This general case corresponds to the complete spontaneous breaking of the SU(3) symmetry of the equilibrium state.

Casimir invariants of the Poisson bracket algebra (3) satisfy the relations $\{g_n(\mathbf{x}), g_{\alpha\beta}(\mathbf{x}')\} = 0$, $g_2 \equiv Sp\hat{g}^2$,

$g_3 \equiv Sp\hat{g}^3$. The presence of such invariants reduces the number of independent magnetic degrees of freedom to six in case of normal multisublattice and degenerate single-sublattice magnets with the spin $s=1$.

Multisublattice magnets are generally described by sixteen magnetic degrees of freedom. The Poisson bracket algebra (6)-(11) contains Casimir invariants: $a_2 = Sp\hat{a}^2$, $a_3 = Sp\hat{a}^3$, $Sp\hat{g}\hat{a}$, $Sp\hat{g}\hat{a}^2$. Therefore, the number of magnetic independent degrees of freedom decreases to twelve. We note that quantities $g_2 \equiv Sp\hat{g}^2$ and $g_3 \equiv Sp\hat{g}^3$ are Casimir invariants for the Poisson bracket algebra (3). However, for the extended algebra (6)-(11), these quantities are not invariants of this kind due to the relation $\{g_n(\mathbf{x}), a_{\alpha\beta}(\mathbf{x}')\} \neq 0$. In accordance with the definition of [22], for the Poisson bracket algebra (6)-(11), the quantities g_2 and g_3 are called semi-Casimirs.

Exchange energy model for the normal and degenerate states

In magnets with the spin $s=1$, there are several possibilities for dynamic behavior with a different set of abbreviated description parameters. The set of these parameters essentially depends on the Hamiltonian and equilibrium state symmetries, which generally may not coincide. While choosing exchange energy models, for simplicity we consider only cases of a uniaxial quadrupole matrix $\hat{q} = q(e_\alpha e_\beta - \delta_{\alpha\beta}/3)$ and uniaxial order parameter of the spin nematic $\hat{m} = m(f_\alpha f_\beta - \delta_{\alpha\beta}/3)$. Let us consider a single-sublattice magnet. In this case, the Hamiltonian is a density functional of the SU(3) symmetry generator $H(\hat{g})$. The expression of the homogeneous part of the exchange energy density may be presented as follows:

$$e_0 = -J_0 \left(\frac{2}{3} q^2 + \frac{1}{2} s^2 \right) + B \left(\frac{2}{3} q^2 + \frac{1}{2} s^2 \right)^2 + \frac{A}{2} s^2 + \frac{C}{4} s^4. \tag{14}$$

Here, $g_2 = 2q^2/3 + s^2/2$. In the energy density, the Casimir invariant g_2 is not sufficient to find equilibrium values of spin modules and the quadrupole matrix. Therefore, we added half-Casimirs s^2 and s^4 , which have a lower SO(3) symmetry, to the expression (14). We believe that these terms are small, so that SU(3) symmetry properties of the homogeneous part of the exchange energy are approximately conserved. In case of the SO(3) symmetric exchange interaction, the energy expression transforms to the known form of the exchange energy of a magnet with the spin $s=1/2$. The explicit form of the homogeneous part of the exchange energy (14) makes it possible to find equilibrium values of magnetic parameters and regions of existence of magnetic phases.

In case of the degenerate multisublattice magnet, when choosing a homogeneous part of the exchange energy, we confine ourselves to its dependence on the Casimir invariant a_2 of the extended algebra (3), (4), and also half-Casimirs: g_2 of the Poisson bracket subalgebra (3); n^2 of the Poisson bracket subalgebra (6), (8); s^2 of the Poisson bracket subalgebra (6). Thus, the homogeneous exchange energy can be represented as follows: $e_0 = e_0^{(1)}(g_2, a_2) + e_0^{(2)}(s^2, n^2)$. We assume the additional term of the $e_0^{(2)}(s^2, n^2)$ form to be small, so that it does not affect dynamic equations, but it affects the stability of equilibrium states. The term $e_0^{(1)}(g_2, a_2)$ is SU(3) symmetric, and in case of the presence of only the SU(3) symmetric Hamiltonian, the quantity $\partial e_0 / \partial g_2|_0 = 0$ is in equilibrium. The inclusion of SO(3) symmetric terms in the energy model representation makes it possible to obtain equilibrium values at $\partial e_0 / \partial g_2|_0 \neq 0$, which leads to new branches of magnetic excitation the spectra.

DYNAMIC EQUATIONS AND SPECTRA OF COLLECTIVE EXCITATIONS

Relations (1),(3),(4) allow us to obtain dynamic equations and find spectra of collective excitations of degenerate magnets with the spin $s=1$. To construct dynamic equations, the inhomogeneous part of the exchange energy be chosen in the following form, according to [23]

$$e_n = \bar{J}Sp(\nabla_k \hat{g})^2 / 2, \quad e_n = \bar{J}Sp(\nabla_k \hat{g})^2 / 2 + \bar{\bar{J}}Sp(\nabla_k \hat{a})^2 / 2. \tag{15}$$

Here, $\bar{J}, \bar{\bar{J}}$ are constants of the inhomogeneous exchange interaction. The first formula in (15) corresponds to a single-sublattice magnet, and the second one corresponds to a multisublattice magnet. From here, we obtain dynamic equations of single-sublattice magnets with the SU(3) symmetry:

$$\hat{g}(\mathbf{x}) = -iJ[\hat{g}(\mathbf{x}), \Delta\hat{g}(\mathbf{x})] \tag{16}$$

Stable equilibrium values of the quantities q, s are local minimum points of the function $e_0(q, s)$ (14). From the conditions $\partial e_0 / \partial s = 0, \partial e_0 / \partial q = 0$ we find minimum energy point q_i^0, s_i^0 . Then we linearize the equation (16) near these equilibrium states and write out the spectra:

1. The solution $s_0 = q_0 = 0$ corresponds to a stable paramagnetic state if exchange interaction constants satisfy the inequalities $J_0 < 0$ and $A - J_0 > 0$. The spectra in this case are degenerate.

2. The solution $s_0^2 = \frac{J_0 - A}{B + C}$, $q_0 = 0$ describes the ferromagnetic equilibrium state. For its stability, it is necessary to satisfy the inequalities: $J_0 - A > 0$, $B + C > 0$, $J_0 C + BA < 0$. The spectra of collective excitations have the following form: $\omega = Jk^2 s_0$, $\omega = \frac{1}{2} Jk^2 s_0$.

3. The solution $s_0 = 0$, $q_0^2 = \frac{3J_0}{4B}$ characterizes the quadrupole magnetic state, the stability of which is ensured by inequalities $J_0 > 0$, $A > 0$, $B > 0$. We obtained the spectrum of magnetic excitations: $\omega = Jk^2 q_0$.

4. The solution $s_0^2 = -\frac{A}{C}$, $q_0^2 = \frac{3}{4} \frac{J_0 C + BA}{CB}$ determines the ferro-quadrupole ordering of the magnetic medium. This solution is stable if: $J_0 C + BA > 0$, $A < 0$, $B > 0$, $C > 0$. The spectra of magnetic excitations are given by: $\vec{s}_0 \parallel \vec{e}_0$: $\omega = Jk^2 s_0$, $\omega = \left| q_0 \pm \frac{1}{2} s_0 \right| Jk^2$, and $\vec{s}_0 \perp \vec{e}_0$: $\omega = \sqrt{q_0^2 + s_0^2} Jk^2$, $\omega = \frac{1}{2} \left(\sqrt{q_0^2 + s_0^2} \pm q_0 \right) Jk^2$.

We consider degenerate states of a multi-sublattice magnet. Using the Poisson brackets (3),(4), we find dynamic equations:

$$\dot{\hat{g}}(\mathbf{x}) = -\nabla_k i \left[\hat{g}, \frac{\partial \hat{e}(\hat{g}, \hat{a})}{\partial \nabla_k g} \right] - \nabla_k i \left[\hat{a}, \frac{\partial \hat{e}(\hat{g}, \hat{a})}{\partial \nabla_k a} \right], \quad \dot{\hat{a}}(x) = i \left[\frac{\delta \hat{H}(\hat{g}, \hat{a})}{\delta g(x)}, \hat{a}(x) \right]. \quad (17)$$

The SU(3) symmetry of the exchange interaction energy density is considered here $\{\hat{G}, e(\mathbf{x})\} = 0$. Taking into account formulas (3),(4), we write out dynamic equations of a degenerate magnet with the spin $s=1$ in the multisublattice case, using the homogeneous energy structure $e_0 = e_0^{(1)}(g_2, a_2) + e_0^{(2)}(s^2, n^2)$ and the explicit form of the inhomogeneous energy part (15):

$$\dot{\hat{g}} = -iJ[\hat{g}, \Delta \hat{g}] - i\bar{J}[\hat{a}, \Delta \hat{a}], \quad \dot{\hat{a}} = i \frac{\partial e}{\partial g_2} [\hat{a}, \hat{g}] - iJ[\hat{a}, \Delta \hat{g}] \quad (18)$$

Next, we linearize equations (18) around possible equilibrium states.

1. Quadro-nematic $\hat{q}_0 \neq 0$, $\hat{n}_0 \neq 0$. Under condition $\vec{e}_0 \parallel \vec{f}_0$, the spectra take the form:

$$\omega = \pm (P_0 - Jk^2) q_0 / 2 + \sqrt{(P_0 + Jk^2) (Jk^2 q_0^2 + 4\bar{J}k^2 m_0^2 + P_0 q_0^2)} / 2, \\ \omega = \pm (P_0 - Jk^2) q_0 / 2 - \sqrt{(P_0 + Jk^2) (Jk^2 q_0^2 + 4\bar{J}k^2 m_0^2 + P_0 q_0^2)} / 2.$$

Here $P_0 = \partial e_0 / \partial g_2|_0$. In case $\vec{e}_0 \perp \vec{f}_0$, there are additional solutions:

$$\omega = Jq_0 k^2, \quad \omega = P_0 k^2, \quad \omega = \sqrt{\bar{J}(P_0 + Jk^2)} m_0 k.$$

2. Quadro-antiferromagnet $\hat{q}_0 \neq 0$, $\hat{n}_0 \neq 0$. In this case, the spectra of collective excitations take the form at $\vec{e}_0 \parallel \vec{n}_0$:

$$\omega = \sqrt{(P_0 + Jk^2) \bar{J}} n_0 k, \quad \omega = \sqrt{(P_0 + Jk^2) (Jk^2 q_0^2 + \bar{J}k^2 n_0^2 + P_0 q_0^2)} / 2 \pm (P_0 - Jk^2) q_0 / 2,$$

In case $\vec{e}_0 \perp \vec{n}_0$:

$$\omega = \sqrt{\bar{J}\bar{J}} n_0 k^2 / 2, \quad \omega = \sqrt{J^2 q_0^2 + 4n_0^2 \bar{J}\bar{J}} k^2, \\ \omega = \sqrt{\bar{J}Jk^2 + F_0 q_0^2 \bar{J}} n_0 k, \quad \omega = \left(\sqrt{J^2 q_0^2 + 4n_0^2 \bar{J}\bar{J}} \pm Jq_0 \right) k^2 / 2,$$

where $F_0 = \partial^2 e_0 / \partial g_2^2|_0$. In this case, along with the quadratic spectra, we obtain the Goldstone spectra for small values of the wave vector \vec{k} , which were previously predicted in work [25].

a) Antiferro-nematic $\hat{g}_0 = 0$, $\hat{a}_0 \neq 0$. The spectra of collective excitations have the form at $\vec{f}_0 \parallel \vec{n}_0$:

$$\omega = \sqrt{\bar{J}P_0 + \bar{J}\bar{J}k^2} n_0 k, \quad \omega = |n_0 \pm 2m_0| \sqrt{\bar{J}P_0 + \bar{J}\bar{J}k^2} n_0 k,$$

when $\vec{e} \perp \vec{n}$:

$$\omega = \sqrt{(n_0^2 + m_0^2)(\bar{J}P_0 + J\bar{J}k^2)}k, \quad \omega = \sqrt{(n_0^2 + 2m_0^2 \pm 2\sqrt{m_0^4 + m_0^2 n_0^2})(\bar{J}P_0 + J\bar{J}k^2)}k,$$

where quantity $n_0^2 + 2m_0^2 - 2\sqrt{m_0^4 + m_0^2 n_0^2} \geq 0$ for any values of m_0 and n_0 .

3. Ferro-quadrupole magnet $\hat{g}_0 \neq 0, \hat{a}_0 = 0$. From here we get the expression at $\vec{s}_0 \parallel \vec{e}_0$:

$$\omega = Jk^2 s_0, \quad \omega = |s_0 \pm 2q_0| Jk^2 / 2, \quad \omega = P_0 s_0, \quad \omega = |s_0 \pm 2q_0| P_0 / 2,$$

at $\vec{s}_0 \perp \vec{e}_0$:

$$\omega = \left(\sqrt{q_0^2 + s_0^2} \pm q_0 \right) k^2 J / 2, \quad \omega = \sqrt{q_0^2 + s_0^2} k^2 J, \quad \omega = \left(\sqrt{q_0^2 + s_0^2} \pm q_0 \right) P_0 / 2, \quad \omega = \sqrt{q_0^2 + s_0^2} P_0.$$

The comparison with the previously found spectra of collective excitations of the normal case leads to the observation that these spectra acquire an activation nature. It is easily seen that in case $P_0 = 0$, and when $q_0 = 0$ or $s_0 = 0$, the spectra of magnetic excitations become the known results of [12].

CONCLUSIONS

We have considered single-sublattice and multisublattice degenerate states of magnets with the spin $s=1$. We have obtained spectra of collective excitations and proposed an explicit form of the energy model presented in terms of Casimir invariants. For the homogeneous part of the exchange energy, we have found conditions for the existence of local minima, which correspond to equilibrium values of the magnet.

In this paper, we have investigated a number of new magnetic states. They include the ferro-quadrupole state, quadro-nematic, quadro-antiferromagnetic, and antiferro-nematic state of the magnetic medium. In case of degenerate magnetic systems, the form of the homogeneous energy model affects the stability of equilibrium states and spectra of collective excitations. In contrast to Bogolyubov's approach [14], where model representations of the energy are not required, the issue of choosing the density of the homogeneous energy takes one of the key values in the phenomenological approach. The presence of the set of Casimir invariants makes it possible to reduce the number of degrees of freedom and expand possibilities of the model representation of the exchange energy. The issue of finding the complete set of functionally independent Casimir invariants for degenerate magnetic media with the spin $s > 1/2$ remains unsolved.

REFERENCES

1. Demishev S.V. et al. Antiferro-quadrupole resonance in CeB 6 // *Physica B: Condensed Matter*. – 2006. – Vol. 378. – P. 602-603.
2. Takeya H. et al. Spin dynamics and spin freezing behavior in the two-dimensional antiferromagnet NiGa₂S₄ revealed by Ga-NMR, NQR and μ SR measurements // *Physical Review B*. – 2008. – Vol. 77. – No. 5. – P. 054429.
3. Santini P. et al. Multipolar interactions in f-electron systems: The paradigm of actinide dioxides // *Reviews of Modern Physics*. – 2009. – Vol. 81. – No. 2. – P. 807.
4. Zibold T. et al. Spin-nematic order in antiferromagnetic spinor condensates // *Physical Review A*. – 2016. – Vol. 93. – No. 2. – P. 023614.
5. Tsunetsugu H., Arikawa M. Spin nematic phase in S=1 triangular antiferromagnets // *Journal of the Physical Society of Japan*. – 2006. – Vol. 75. – No. 8. – P. 083701-083701.
6. Fridman Yu.A., Matyunin D.A. Phase states of a 2D non-Heisenberg ferromagnet // *Pis'ma v ZHTF*. – 2007. – Vol. 33. – No. 22.
7. Kosmachev O.A., Krivtsova A.V., Fridman Y.A. Effect of interionic anisotropy on the phase states and spectra of a non-Heisenberg magnet with S=1 // *Journal of Experimental and Theoretical Physics*. – 2016. – Vol. 122. – No. 2. – P. 318-327.
8. Bar'yakhtar V.G. et al. Dynamics and relaxation in spin nematics // *Physical Review B*. – 2013. – Vol. 87. – No. 22. – P. 224407.
9. Papanicolaou N. Unusual phases in quantum spin-1 systems // *Nuclear Physics B*. – 1988. – Vol. 305. – No. 3. – P. 367-395.
10. Li P., Shen S.Q. Two-dimensional gapless spin liquids in frustrated SU(N) quantum magnets // *New Journal of Physics*. – 2004. – Vol. 6. – No. 1. – P. 160.
11. Bernatska J., Holod P. A generalized Landau–Lifshitz equation for an isotropic SU(3) magnet // *Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical*. – 2009. – Vol. 42. – No. 7. – P. 075401.
12. Kovalevsky M. Y. Dynamics of normal and degenerate nonequilibrium states of magnets with spin S=1 // *Low Temperature Physics*. – 2010. – Vol. 36. – No. 802. – P. 1006-1012.
13. Kovalevsky M. Y. Unitary symmetry and generalization of the Landau–Lifshitz equation for high-spin magnets // *Low Temperature Physics*. – 2015. – Vol. 41. – No. 9. – P. 917-937.
14. Bogolyubov N.N. *Izbrannyye trudy*, Vol. 3. – Kiyev: Naukova dumka, 1971. – Vol. 19. – No. 1.
15. Halperin B.I., Hohenberg P.C. Hydrodynamic theory of spin waves // *Physical Review*. – 1969. – Vol. 188. – No. 2. – P. 898.
16. Volkov D.V., Zheltukhin A.A., Bliokh Yu.P. Phenomenological Lagrangian of spin waves // *FTT*. – 1971. – P. 1668-1678.
17. Andreev A.F., Marchenko V.I. Symmetry and macroscopic dynamics of magnets // *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*. – 1980. – Vol. 130. – No. 1. – P. 39-63.
18. Dzyaloshinskii I.E., Volovick G.E. Poisson brackets in condensed matter physics // *Annals of Physics*. – 1980. – Vol. 125. – No. 1. – P. 67-97.
19. Landau L., Lifshitz E. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies // *Phys. Z. Sowjetunion*. – 1935. – Vol. 8. – No. 153. – P. 101-114.

20. Turov E.A. et al. Symmetry and Physical Properties of Antiferromagnets. – Moscow: Fizmatlit, 2001. – Vol. 560.
21. Kovalevsky M.Y., Glushchenko A.V. Quantum states, symmetry and dynamics in degenerate spin $s=1$ magnets // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2014. – Vol. 355. – P. 192-196.
22. Sheynman O.K. Krichever-Novikov algebras, their representations and applications in geometry and mathematical physics // Sovremennye problemy matematiki. – 2007. – Vol. 10. – P. 3-140.
23. Kovalevsky M.Y., Glushchenko A.V. symmetry and nonlinear dynamics of high spin magnets // Annals of physics. – 2014. – Vol. 349. – P. 55-72.
24. Smerald A., Shannon N. Theory of spin excitations in a quantum spin-nematic state // Physical Review B. – 2013.–Vol. 88. – No. 18. – P. 184430.

PACS: 29.17.+w; 41.75.Lx

INCREASE OF AMPLITUDE OF ACCELERATING WAKEFIELD EXCITED BY SEQUENCE OF SHORT RELATIVISTIC ELECTRON BUNCHES IN PLASMA AT MAGNETIC FIELD USE

D.S. Bondar¹, I.P. Levchuk², V.I. Maslov², I.N. Onishchenko²

¹ *Karazin Kharkiv National University
61022, Kharkiv, Ukraine*

² *NSC Kharkov Institute of Physics & Technology
61108 Kharkiv, Ukraine*

e-mail: ymaslov@kipt.kharkov.ua

Received April 11, 2017

Earlier, the authors found a mechanism for the sequence of short relativistic electron bunches, which leads to resonant excitation of the wakefield, even if the repetition frequency of bunches differs from the plasma frequency. In this case, the synchronization of frequencies is restored due to defocusing of the bunches which get into the bad phases with respect to the plasma wave. However, in this case, the bunches are lost, which as a result of this do not participate in the excitation of the wakefield. In this paper, numerical simulation was used to study the dynamics of electron bunches and the excitation of the wakefield in a magnetized plasma by a long sequence of short bunches of relativistic electrons. When a magnetic field is used, the defocused bunches return to the region of interaction with the field after a certain time. In this case, the electrons of the bunches, returning to the necessary phases of the field, participate in the excitation of the wakefield. Also, the use of a magnetic field leads to an increase of the frequency of the excited wave relative to the repetition frequency of bunches. The latter increases the time for maintaining the resonance and, consequently, leads to an increase of the amplitude of the excited wakefield.

KEYWORDS: wakefield, relativistic electrons, maintenance of the existence of a resonance, an increase of the amplitude of the excited wakefield.

ЗБІЛЬШЕННЯ АМПЛІТУДИ ПРИСКОРЮЮЧОГО КІЛЬВАТЕРНОГО ПОЛЯ, ЯКЕ ЗБУДЖУЄТЬСЯ ПОСЛІДОВНІСТЮ КОРОТКИХ РЕЛЯТИВІСТСЬКИХ ЕЛЕКТРОННИХ ЗГУСТКІВ В ПЛАЗМІ, ПРИ ВИКОРИСТАННІ МАГНІТНОГО ПОЛЯ

Д.С. Бондар¹, І.П. Левчук², В.І. Маслов², І.М. Онищенко²

¹ *Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
61022, Харків, Україна*

² *ННЦ Харківський фізико-технічний інститут
61108, Харків, Україна*

Раніше авторами був знайдений для послідовності коротких релятивістських електронних згустків механізм, який призводить до резонансного збудження кільватерного поля, навіть якщо частота проходження згустків відрізняється від плазмової частоти. В цьому випадку синхронізація частот відновлюється за рахунок дефокусування згустків, які потрапляють в погані фази по відношенню до плазмової хвилі. Однак при цьому втрачаються згустки, які в результаті цього не беруть участі в збудженні кільватерного поля. У цій роботі чисельним моделюванням вивчена динаміка електронних згустків і збудження кільватерного поля в замагніченій плазмі довгою послідовністю коротких згустків релятивістських електронів. При використанні магнітного поля дефокусовані згустки через певний час повертаються в область взаємодії з полем. При цьому електрони згустків, що повертаються в потрібні фази поля, беруть участь в збудженні кільватерного поля. Також використання магнітного поля призводить до збільшення частоти збуджуваної хвилі щодо частоти проходження згустків. Останнє збільшує час підтримки резонансу і, отже, призводить до збільшення амплітуди кільватерного поля.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: кільватерне поле, релятивістські електрони, підтримання існування резонансу, збільшення амплітуди збуджуваного кільватерного поля.

УВЕЛИЧЕНИЕ АМПЛИТУДЫ УСКОРЯЮЩЕГО КИЛЬВАТЕРНОГО ПОЛЯ, ВОЗБУЖДАЕМОГО ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОСТЬЮ КОРОТКИХ РЕЛЯТИВИСТСКИХ ЭЛЕКТРОННЫХ СГУСТКОВ В ПЛАЗМЕ, ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ МАГНИТНОГО ПОЛЯ

Д.С. Бондар¹, И.П. Левчук², В.И. Маслов², И.Н. Онищенко²

¹ *Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина
61022, Харьков, Украина*

² *ННЦ Харьковский физико-технический институт
61108, Харьков, Украина*

Ранее авторами был найден для последовательности коротких релятивистских электронных сгустков механизм, который приводит к резонансному возбуждению кильватерного поля, даже если частота следования сгустков отличается от плазменной частоты. В этом случае синхронизация частот восстанавливается за счет дефокусировки сгустков, которые попадают в плохие фазы по отношению к плазменной волне. Однако при этом теряются сгустки, которые в результате этого не участвуют в возбуждении кильватерного поля. В этой работе численным моделированием изучена динамика электронных сгустков и возбуждение кильватерного поля в замагнитенной плазме длинной последовательностью коротких сгустков релятивистских электронов. При использовании магнитного поля дефокусированные сгустки через определенное время возвращаются в область взаимодействия с полем. При этом электроны сгустков, возвращающиеся в нужные фазы

поля, участвуют в возбуждении кильватерного поля. Также использование магнитного поля приводит к увеличению частоты возбуждаемой волны относительно частоты следования ступков. Последнее увеличивает время поддержания резонанса и, следовательно, приводит к увеличению амплитуды возбуждаемого кильватерного поля.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: кильватерное поле, релятивистские электроны, поддержание существования резонанса, увеличению амплитуды возбуждаемого кильватерного поля

Development of accelerators of charged particles, in particular, colliders is one of the most promising areas of current research. Modern accelerators on metal structures are huge and expensive, because metal breaks out at 100MeV/m. It is clear that to achieve in linear colliders high energy (above 1 TeV) it is necessary to increase their length to tens of kilometers. One can estimate which dimensions of the accelerators should be used to accelerate electrons to the required energy of 1 TeV. It's tens of kilometers. It is necessary to make them smaller and cheaper. To do this, it is necessary to increase the rate of acceleration, i.e. to increase the accelerating field. In a plasma, one can excite the field $E_z=100$ GeV/m. This can be done using a wakefield, excited by a bunch of electrons, by a bunch of ions or by a laser pulse. In the experiment, the record results were already obtained: the laser pulse accelerated electrons in the plasma to 4.2 GeV at a distance 9cm. Therefore, the electric field equals $E_z \approx 47$ GeV/m [1]. Also in an experiment in plasma, a dense electron bunch with the energy of 42 GeV excited the wakefield, and its tail accelerated to the energy 84 GeV (i.e., doubled the energy) at a distance of approximately 1 m [2], then the electric field is $E_z \approx 42$ GeV/m. In a dielectric in the experiment, an impulse field of approximately 10 GeV/m has been excited. I.e. the dielectric accelerator can be in 100 times shorter than the metallic accelerator, and the plasma accelerator is in 1000 times shorter. Because the dielectric accelerator is easier to operate, and the plasma provides larger fields, the dielectric and plasma accelerators are intensively investigated.

The wakefield excitation in a plasma by a long sequence of electron bunches is considered in this paper. An important factor of interest to this case is the use of external longitudinal (along the axis) magnetic field with the purpose to increase the accelerating field. So, the aim of the work is to investigate the features of use some optimal magnetic field, that would ensure a greater growth of the rate of acceleration.

PROBLEM STATEMENT

At resonant excitation of the wakefield in the plasma, the repetition frequency of bunches ω_m , is equal to the frequency of the excited wakefield $\omega_{pe} = \omega_m$, i.e. to electron plasma frequency ω_{pe} . Since along the radius r , the wakefield is localized near the sequence of bunches, i.e. along the radius r , it is localized in some neighborhood of the sequence of bunches, then the wakefield has not only a longitudinal E_z accelerating/decelerating field, but also a radial F_r focusing/defocusing force. The field E_z and F_r are shifted relative to each other by a quarter of the wavelength, i.e. on $\pi/2$. Where $E_z = E_{z,max}$, there $F_r = 0$; and where $E_z = 0$, there $F_r = F_{r,max}$. Since the bunches are finite size, the part of the bunch is defocused and ceases to excite wakefield. Part firstly is focused, and then due to the expansion of betatron oscillations (i.e., radial in the radial potential well) is again defocused, i.e. it leaves along r the region of interaction with the field and ceases to excite the wakefield too. Therefore, it is advisable not to allow the bunches to be defocused or periodically return them by an external longitudinal (along the axis) magnetic field. Although it is known that the use of a magnetic field in the experiment is associated with additional difficulties. But the magnetic field suppresses the focusing, and the maximum wakefield has been observed when the bunches are focused by the wakefield. Also, the magnetic field suppresses defocusing. And it is very important for the excitation of the wakefield, because in the experiment it is very difficult to maintain the resonant plasma because of its uncontrolled inhomogeneity and nonstationarity. And in the nonresonant case only small amplitude beatings are excited. However, it was shown in [3-7] that due to the self-cleaning of the "bad" bunches at their defocusing and in the nonresonant case, intense excitation of the wakefield is possible.

ANALYSIS OF THE USING OF A MAGNETIC FIELD

As a consequence, it would seem that the use of a magnetic field is impractical, it suppresses defocusing. Hence it follows that one must use some optimal magnetic field when it does not yet suppress focusing and defocusing, but it already returns defocussed bunches after some time into the region of interaction with the field. Then it is necessary to use a not very strong optimal magnetic field, so that after defocusing the bunches they return to the axis after some time, and they again excite the wakefield. The return time is $2\pi/\omega_{ce}$. Where ω_{ce} is the electron cyclotron frequency. In order that H_0 allows electrons to reach the axis in the focusing field, the radius of the radial oscillations of electrons in crossed H_{0z} and E_r fields should be not less than the radius of the bunch

$$\frac{eE_r}{m_e \gamma_b \omega_{ce}^2} > r_b. \quad (1)$$

It is necessary that for N-th bunch (if N bunches excite the maximum wakefield) it is satisfied when the maximum wakefield is reached. Sequential bunches excite wakefield that firstly it grows linearly with increasing number of injected bunches

$$E_{rN} = NE_{r1}. \quad (2)$$

E_{rN} is the radial wakefield after N bunches. E_{r1} is the radial wakefield after the 1st bunch. Then it must be fulfilled

$$\frac{eNE_{r1}}{m_e \gamma_b \omega_{ce}^2} > r_b. \quad (3)$$

It is necessary to note that an additional frequency shift occurs when a magnetic field is used which, at a certain value of the magnetic field, tightens the maintenance of the resonance, leading to an increase of the excited wakefield.

A long sequence of electron bunches of a small charge was used in the experiment [8] and in numerical simulation [9] for excitation of an intense wakefield in a plasma. However, as it turned out, there is the limiting amplitude of the wakefield. It is determined by the fact that the nonlinear shift of the frequency of the wakefield appears with increase of the wakefield amplitude. Because of this, the resonant interaction of bunches with the wakefield is detuned. This resonance detuning is delayed in time, if, as it was done in [10], a small excess of the plasma density above the resonant value is chosen initially. The same resonance maintenance can be ensured by using a small magnetic field. Using the LCODE [11], numerical simulation of the growth of the wakefield amplitude was performed. It is shown that when the resonance is maintained, the amplitude of the wakefield increases in comparison with the case of the initial resonant conditions.

The wakefield excitation in a plasma by a long sequence of electron bunches is considered in this paper.

The resonant excitation of the wakefield by a long sequence of relativistic electron bunches is difficult, because it is difficult to maintain a homogeneous and stationary plasma in the experiment. However, intense wakefield excitation by a long sequence of relativistic electron bunches has been observed. The mechanism of resonant excitation of the wakefield by a nonresonant sequence of short electron bunches has been investigated in [9]. Frequency synchronization is carried out due to self-cleaning of the sequence of bunches due to defocusing and leaving along radius of some bunches that are not in phase with the wave. The simulation results of the mechanism of maintaining the resonance of electron bunches with a wakefield using a magnetic field are presented in this paper.

In [9], for a sequence of short relativistic electron bunches, a mechanism was found which leads to a resonant excitation of the wakefield, even if the repetition frequency of bunches differs appreciably from the plasma frequency. Synchronization of frequencies is restored due to defocusing of bunches which get into bad phases with respect to the plasma wave. However, the bunches are lost, which as a result do not participate in the excitation of the wakefield. When a magnetic field is used, the defocused bunches return to the region of interaction with the field after a certain time. In this case, the electrons of the bunches returning to the necessary phases of the field can participate in the excitation of the wakefield. Also, the use of a magnetic field leads to an increase of the frequency of the excited wave relative to the repetition frequency of bunches.

The latter increases the time for maintaining the resonance and, consequently, leads to an increase of the amplitude of the excited wakefield.

SIMULATION OF RESONANCE RECOVERY FOR THE CASE OF 32 BUNCHES

For numerical simulation parameters are selected: $n_{res}=10^{11} \text{cm}^{-3}$ is the resonant plasma density which corresponds to ratio $\omega_{pe}=\omega_m=2\pi \cdot 2.8 \cdot 10^9$, relativistic factor of bunches equals $\gamma_b=5$, have been selected. Where ω_m is the repetition frequency of bunches, $\omega_{pe}=(4\pi n_{res} e^2/m_e)^{1/2}$ is the electron plasma frequency. The density of bunches $n_b = 6 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ is distributed in the transverse direction approximately according to Gaussian distribution, $\sigma_r = 0.5 \text{cm}$, $\lambda = 10.55 \text{cm}$ is the wavelength, $\xi = V_b t - z$, V_b is the velocity of bunches. Time is normalized on ω_{pe}^{-1} , distance - on c/ω_{pe} , density - on n_{res} , current I_b - on $I_{cr} = \pi m c^3 / 4e$, fields - on $(4\pi n_{res} c^2 m_e)^{1/2}$.

We consider the dynamics of the first 32 bunches in plasma. We use the cylindrical coordinate system (r, z) and draw the plasma and beam densities at some z as a function of the dimensionless time $\tau = \omega_{pe} t$.

The longitudinal coordinate $\xi = z - V_b t$ is normalized on $2\pi/\lambda$ (λ is the wavelength). The values of the E_z , F_r , H_θ and H_ϕ are normalized on $mc\omega_{pe}/e$. Where e , m are the charge and mass of the electron, c is the light velocity, ω_{pe} is the electron plasma frequency.

We do not take into account the longitudinal dynamics of the bunches, because at the times and energies of the beam according to

$$\frac{dV_z(r)}{dr} \propto \frac{1}{\gamma_b^3}, \quad \frac{dV_r(r)}{dr} \propto \frac{1}{\gamma_b}$$

radial relative shifts of beam particles predominate. V_z , V_r are the longitudinal and radial velocities of the electron bunches, γ_b is the relativistic factor of the bunches.

The wakefield excitation by 32 bunches is considered for two cases: initially the resonant case and the case of resonance recovery. We consider a sequence of 32 bunches which are uniform in the longitudinal direction and are

distributed according to Gaussian along the radius. The lengths of the bunches are chosen equal to half of the wavelength $\xi_b = \lambda/2$.

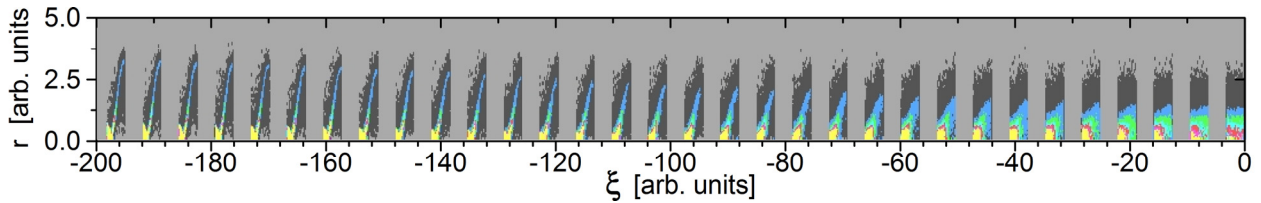


Fig. 1. Spatial distribution of density n_b of sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant bunches into the plasma at $\xi_b = \lambda/2$, $I_b = 0.2 \times 10^{-3}$

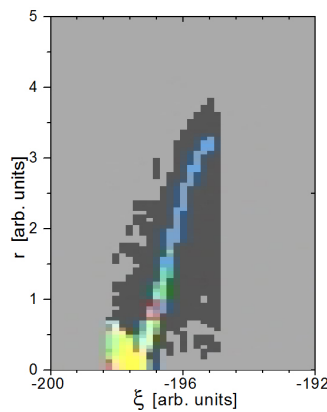


Fig. 1a (part of Fig. 1). Spatial distribution of density n_b of 32nd initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant bunch into the plasma at $\xi_b = \lambda/2$, $I_b = 0.2 \times 10^{-3}$

We consider the case when the initial density of plasma electrons n_0 is such that the repetition frequency of the bunches ω_m is equal to the electron plasma frequency $\omega_m = \omega_{pe}$. In this case, up to the point of maximum focusing of the bunches E_z grows and then it decreases during refocusing. To compensate the charge of the bunches, some of the plasma electrons leave the axis. Then the phase velocity of the wave $V_{ph}(r=0)$ (and $\omega_{pe}(r=0)$) on the axis becomes smaller than at the periphery with respect to r . As a result, the wave becomes skewed (Fig. 2.).

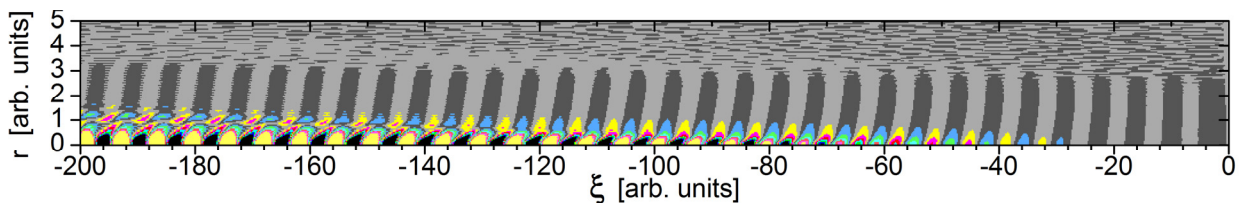


Fig. 2. Spatial distribution of plasma electron density n_e in wakefield, excited by sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant bunches

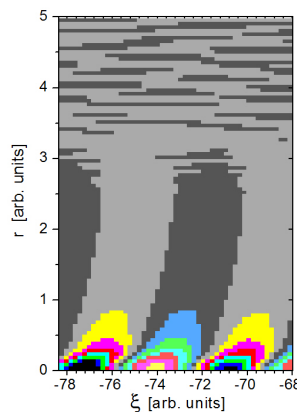


Fig. 2a (part of Fig. 2). Spatial distribution of plasma electron density n_e in 12th wavelength of wakefield, excited by sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant bunches

Also, in this case, $V_{ph}(r=0) < V_b$ is smaller than the beam velocity V_b , and $\omega_{pe}(r=0) < \omega_m$, i.e. the wave becomes nonresonant with a sequence of bunches. The wave lags behind the bunches and the smaller their parts get into the focusing fields (Figs. 1, 1a, 3, 3a, 5, 5a, 7, 7a).

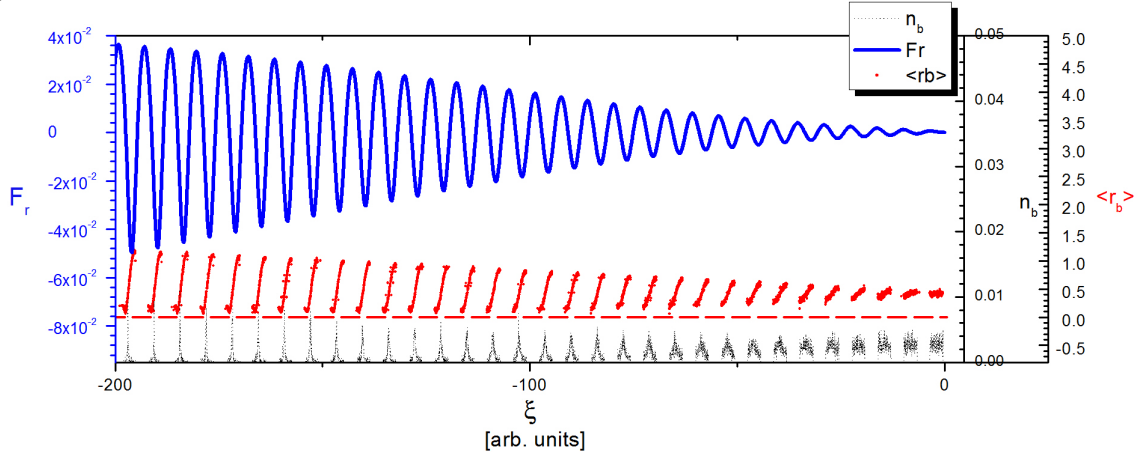


Fig. 3. Longitudinal distribution of radius r_b , of density n_b of sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant bunches and of radial wake force F_r into the plasma at $\xi_b = \lambda/2$, $I_b = 0.2 \times 10^{-3}$

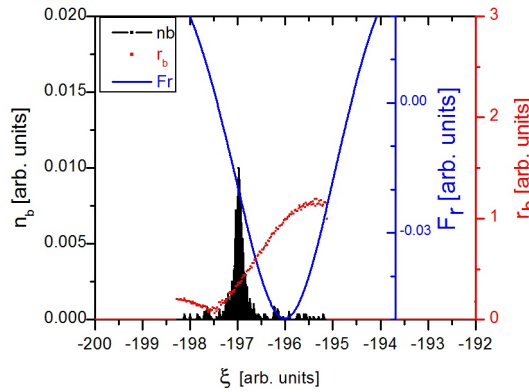


Fig. 3a (part of Fig. 3). Longitudinal distribution of radius r_b , of density n_b of 32nd initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant bunch and of radial wake force F_r in 32nd wavelength of wakefield into the plasma at $\xi_b = \lambda/2$, $I_b = 0.2 \times 10^{-3}$

In this case, a very small part of their first front gets into the accelerating phases (Figs. 4, 4a.).

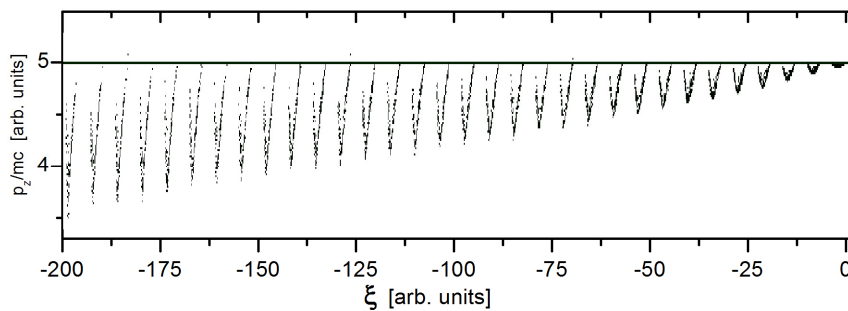


Fig. 4. Longitudinal momenta of 32 bunches

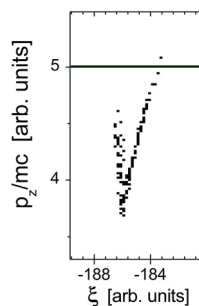


Fig. 4a (part of Fig. 4). Longitudinal momenta of 30th bunch

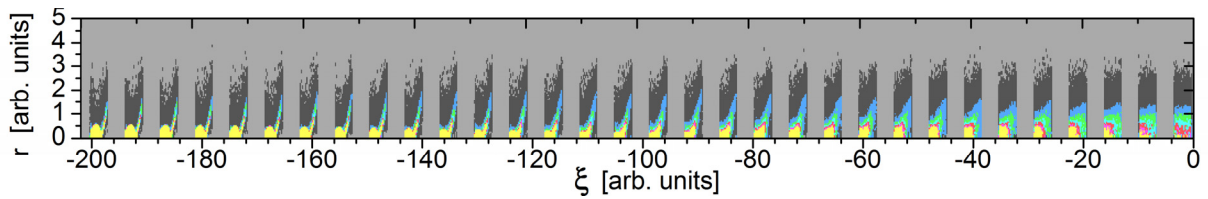


Fig. 5. Spatial distribution of density n_b of sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous bunches into the plasma at $\xi_b=\lambda/2$, $I_b=0.2 \times 10^{-3}$, $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$, n_{res} is the resonant plasma electron density

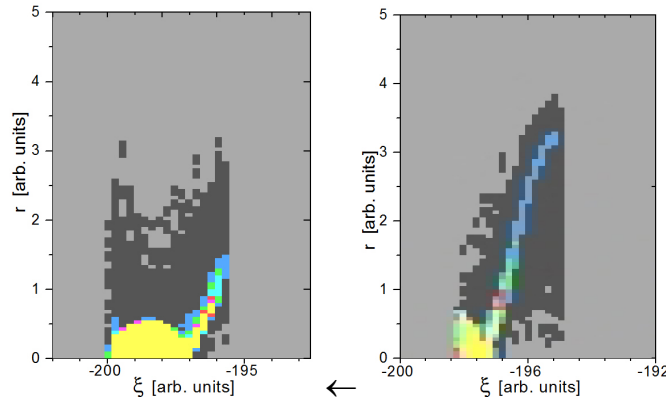


Fig. 5a (part of Fig. 5). Spatial distribution of density n_b of 32nd initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant (right) (left at $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$) bunch into the plasma at $\xi_b=\lambda/2$, $I_b=0.2 \times 10^{-3}$

If we use a somewhat larger n_0 and a small magnetic field $H_0=0.1$, then the resonance of the wave with the bunch sequence is restored on the axis, since on the axis $\omega_{pe}(0) \approx \omega_m$. However, at the periphery with respect to r , the wave becomes nonresonant with the bunch sequence, so now $\omega_{pe}(r>0) > \omega_m$. Then the wave becomes skewed in the opposite direction (Figs. 2, 2a, 6, 6a.).

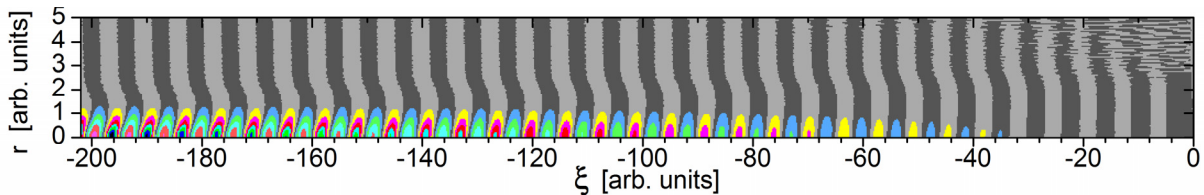


Fig. 6. Spatial distribution of plasma electron density n_e in wakefield, excited by sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous bunches into the plasma at $\xi_b=\lambda/2$, $I_b=0.2 \times 10^{-3}$, $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$

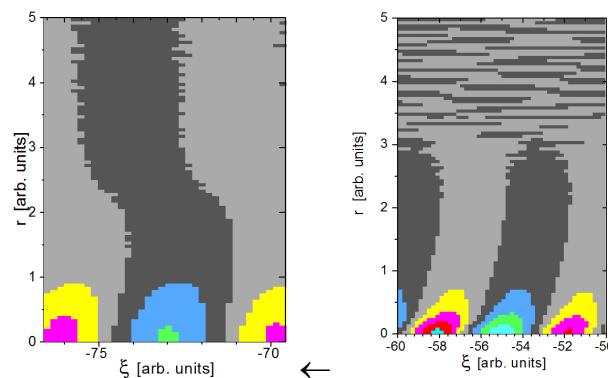


Fig. 6a (part of Fig. 6). Spatial distribution of plasma electron density n_e in wakefield, excited by sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous resonant (right) (left at $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$, $I_b=0.2 \times 10^{-3}$, $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$) bunch into the plasma at $\xi_b=\lambda/2$,

When the resonance of a wave is restored to a sequence of bunches on the axis, larger parts of the bunches get into the focusing fields (Figs. 1, 1a, 3, 3a, 5, 5a, 7, 7a), and defocused bunches is weakly defocused (Fig. 7a),

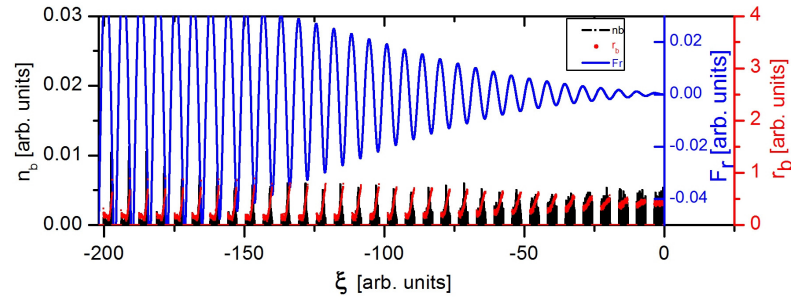


Fig. 7. Longitudinal distribution of radius r_b of density n_b of sequence of initially radially Gaussian and longitudinally homogeneous bunches and of radial wake force F_r into the plasma at $\xi_b=\lambda/2$, $I_b=0.2\times 10^{-3}$, $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$

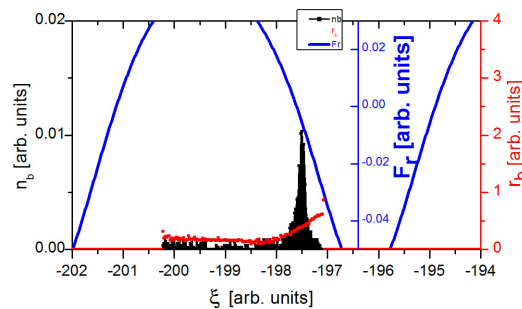


Fig. 7a (part of Fig. 7). Longitudinal distribution of radius r_b of density n_b of bunch and of radial wake force F_r into the plasma at $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$

the excited wakefield becomes larger (Figs. 3,7) compared with the initially resonant and subsequent disturbance of the resonance, and small parts of the back fronts of the bunches get into the accelerating phases (Figs. 8).

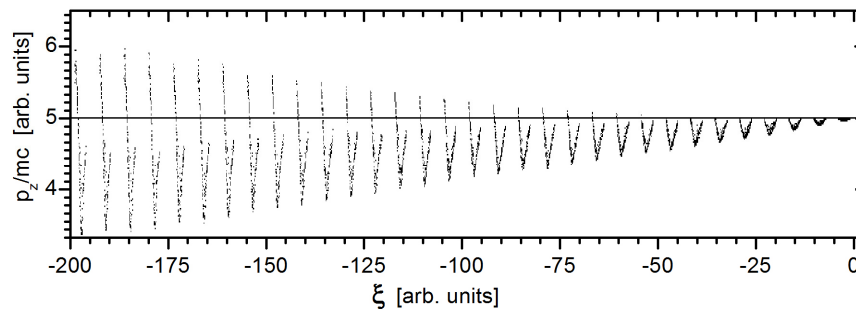


Fig. 8. Longitudinal momenta of 32 bunches at $\xi_b=\lambda/2$, $I_b=0.2\times 10^{-3}$, $H_0=0.1$, $n_e/n_{res}-1=0.02$

At $H_0=0.1$ the wakefield E_z became more uniform along the plasma, because it does not so rapidly decrease to the end of the plasma.

CONCLUSION

The main conclusion is that, magnetic field can be used for wakefield increase and for increase the transformation of driver-bunch energy into the accelerated electrons (witness) energy. In this paper it is shown that in order to improve the energy transformation of driver-bunch energy into the witness energy, some optimal magnetic field should be used when it does not yet suppress focusing and defocusing. Such optimal magnetic field should also ensure returns defocussed bunches after some time into the region of the interaction with the field. Moreover, it is important to choose such optimal magnetic field that would return the bunches to the axis, after some time that bunches would again excite the wakefield.

It is also important to note that the use of a magnetic field leads to an increase in the frequency of the excited wave relative to the repetition frequency of bunches. Using the code lcode [9], numerical simulation of the growth of the wakefield amplitude was performed. It is shown that when the resonance is maintained, the amplitude of the wakefield increases in comparison with the case of the initial resonant conditions. The simulation results of the mechanism of maintaining the resonance of electron bunches with a wakefield using a magnetic field are presented in this paper.

REFERENCES

1. Leemans W.P., Gonsalves A.J., Mao H.-S. et al. Multi-GeV Electron Beams from Capillary-Discharge-Guided Subpetawatt Laser Pulses in the Self-Trapping Regime // Phys. Rev. Lett. – 2014. – Vol. 113. - P. 245002.

2. Blumenfeld I., Clayton C.E., Decker F.-J., et al. Energy doubling of 42 GeV electrons in a metre-scale plasma wakefield accelerator // *Nature, Letters*. -2007. - Vol. 445. - P. 741-744.
3. Lotov K.V, Maslov V.I., Onishchenko I.N., Svistun E. Resonant excitation of plasma wakefields by a nonresonant train of short electron bunches // *Plasma Phys. Control. Fusion*. – 2010. – Vol.52 . – No.6. – P.065009.
4. Lotov K.V, Maslov V.I., Onishchenko I.N., Svistun E. 2.5D simulation of plasma wakefield excitation by a nonresonant chain of relativistic electron bunches // *Problems of Atomic Science and Technology*. – 2010. – No.2. – P.122-124.
5. Lotov K. V., Maslov V. I., Onishchenko I. N., Svistun O. M., Vesnovskaya M.S. To the Plasma Wakefield Excitation by a Nonresonant Sequence of Relativistic Electron Bunches at Plasma Frequency above Bunch Repetition Frequency // *Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Plasma Physics*. – 2010. – No.6. . – P.114 – 116.
6. Lotov K. V., Maslov V. I., Onishchenko I. N. Long Sequence of Relativistic Electron Bunches as a Driver in Wakefield Method of Charged Particles Acceleration in Plasma // *Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Plasma Physics*. – 2010. – No.6. . – P.103 – 107.
7. Lotov K.V, Maslov V.I., Onishchenko I.N., Yarovaya I.P. Mechanisms of Synchronization of Relativistic Electron Bunches at Wakefield Excitation in Plasma // *Problems of Atomic Science and Technology*. – 2013. –Vol.–86.– No.4. – P.73-76.
8. Berezin A.K., Fainberg Ya.B., Kiselev V.A., et al., Wakefield excitation in plasma by relativistic electron beam, consisting regular train of short bunches // *Phys. Plasmas*. – 1994–Vol.–20. – No.7. – P.663-670.
9. Lotov K.V, Maslov V.I., Onishchenko I.N., Svistun E.N. Resonant excitation of plasma wakefields by a non-resonant train of short electron bunches // *Plasma Phys. Control. Fusion*. – 2010–Vol.–52. – P.065009.
10. Lotov K.V, Maslov V.I., Onishchenko I.N., Svistun E. N., 2.5D simulation of plasma wakefield excitation by a nonresonant chain of relativistic electron bunches // *Problems of Atomic Science and Technology*. – 2010. – No.– P.122-124.
11. Lotov K.V. Simulation of ultrarelativistic beam dynamics in plasma wakefield accelerator // *Phys. Plasmas*. – 1998. – Vol.5. – No.3.– P.785-791.

PACS: 87.14.Cc, 87.16.Dg

EFFECT OF AMYLOID FIBRILS ON ELECTROKINETIC PROPERTIES OF LIPID VESICLES

U. Tarabara¹, K. Vus¹, S. Girnyk¹, N. Kamneva², O. Lavryk¹,
M. Mikhailyuta¹, V. Trusova¹, G. Gorbenko¹

¹Department of Nuclear and Medical Physics, V.N. Karazin Kharkiv National University

²Department of Physical Chemistry, V.N. Karazin Kharkiv National University

4 Svobody Sq., Kharkiv, 61022, Ukraine

e-mail: uliana.tarabara@gmail.com

Received April 1, 2017

The influence of the lysozyme and serum albumin in their native and amyloid forms on the electrokinetic behavior of the negatively charged uni- and multilamellar liposomes from the zwitterionic lipid phosphatidylcholine and anionic lipid cardiolipin has been investigated using the microelectrophoresis technique. The zeta - potential, the surface electrostatic potential and surface charge density of the lipid vesicles have been determined upon varying the lipid-to-protein molar ratio. The complex dependencies of the electrophoretic mobility on the protein concentration and reversal of the surface charge observed for the multilamellar vesicles have been explained by the multilayer protein adsorption on the liposomal surface. It has been found that the native and fibrillar proteins differ in their ability to modify the charge state of the model membranes.

KEYWORDS: electrophoretic mobility, lipid vesicles, lysozyme, serum albumin, amyloid fibrils

ВЛИЯНИЕ АМИЛОИДНЫХ ФИБРИЛЛ НА ЭЛЕКТРОКИНЕТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЛИПИДНЫХ ВЕЗИКУЛ

У. Тарабара¹, Е. Вус¹, С. Гирнык¹, Н. Камнева², О. Лаврик¹,
М. Михайлюта¹, В. Трусова¹, Г. Горбенко¹

¹Кафедра ядерной и медицинской физики, Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина

²Кафедра физической химии, Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина

пл. Свободы 4, Харьков, 61022, Украина

Методом микроэлектрофореза исследовано влияние нативной и амилоидной форм лизоцима и сывороточного альбумина на электрокинетическое поведение моно- и мультиламеллярных липосом из цвиттерионного липида фосфатидилхолина и анионного липида кардиолипина. При варьировании молярного соотношения липид:белок были определены дзета – потенциал, поверхностный электростатический потенциал и поверхностная плотность заряда липидных везикул. Сложная зависимость электрофоретической подвижности от концентрации белка и изменение знака поверхностного заряда, выявленные для мультиламеллярных везикул, были объяснены мультислойной адсорбцией белков на поверхности липосом. Обнаружено, что нативная и фибриллярная формы белков различаются по их способности модифицировать зарядовое состояние модельных мембран.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: электрофоретическая подвижность, липидные везикулы, лизоцим, сывороточный альбумин, амилоидные фибриллы

ВПЛИВ АМІЛОЇДНИХ ФІБРИЛ НА ЕЛЕКТРОКІНЕТИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ЛІПІДНИХ ВЕЗИКУЛ

У. Тарабара¹, К. Вус¹, С. Гірник¹, Н. Камнева², О. Лаврик¹,
М. Михайлюта¹, В. Трусова¹, Г. Горбенко¹

¹Кафедра ядерної та медичної фізики, Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна

²Кафедра фізичної хімії, Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна

пл. Свободи 4, Харків, 61022, Україна

Методом мікроелектрофорезу досліджено вплив нативної та амилоїдної форм лізоциму та сироваткового альбуміну на електрокінетичну поведінку моно- і мультиламеллярних ліпосом із цвіттерійонного ліпіді фосфатидилхоліну та аніонного ліпіді кардіоліпіну. При варіюванні молярного співвідношення ліпід:білок було визначено дзета – потенціал, поверхневий електростатичний потенціал та поверхневу густину заряду ліпідних везикул. Складна залежність електрофоретичної рухливості від концентрації білка та зміна знаку поверхневого заряду, виявлені для мультиламеллярних везикул, було пояснено мультишаровою адсорбцією білків на поверхні ліпосом. Встановлено, що нативна та фібриллярна форми білків відрізняються за їх здатністю модифікувати зарядовий стан модельних мембран.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: електрофоретична рухливість, ліпідні везикули, лізоцим, сироватковий альбумін, амилоїдні фібрили

Electrostatic phenomena are known to play an essential role in determining the structural and functional properties of biological systems [1,2]. In particular, electrostatics controls a wide variety of processes occurring in cellular membranes, among which are non-specific and specific protein–lipid interactions, protein folding, translocation and orientation in the lipid bilayer [3-5], enzyme functioning, ion binding and transport, structural and phase transitions in the lipid phase [1], recognition events [6,7], pharmacological effects [8], etc. Biological membranes consist of hundreds of different molecular species including lipids, proteins and carbohydrates bearing numerous ionized groups which account for the net negative charge of the membrane surface [1]. An essential part of such groups belong to anionic lipids such as phosphatidylglycerol, cardiolipin, phosphatidylserine, phosphatidic acid and phosphatidylinositol, whose

fraction is typically less than 30% of the total membrane lipids [9]. These lipids are involved in specific interactions with protein sequences containing positively charged side amino acids, such as arginine, lysine or histidine. The interactions between oppositely charged groups of proteins and lipids is a fundamental biological phenomenon implicated in a range of important membrane-related processes, particularly, in selective binding of cationic cell-penetrating, antimicrobial and viral peptides, toxins or ion channels [10-12] and protein aggregation associated with amyloid disorders including neurological diseases, type II diabetes, spongiform encephalopathies, rheumatoid arthritis, etc. [13-17]. These pathologies are provoked by misfolding of specific proteins and their self-assembly into highly ordered aggregates, amyloid fibrils [18,19]. Amyloid fibrils are self-assembled protein nanostructures distinguished by the core supramolecular β -sheets propagating along the main axis of the fibril with β -strands running perpendicularly to this axis.

Accumulating evidence indicates that cell membranes represent a direct target for the toxic pre-fibrillar and fibrillar aggregates of misfolded proteins which cause membrane damage and subsequent cell death [20]. According to the current concepts, the cytotoxic potential of aggregated proteins may originate from the loss of membrane integrity [21], appearance of non-specific ion channels [22], uptake of lipids into the growing fiber [23], modifications of the intracellular redox status and free calcium level [24], and impaired functional activity of membrane proteins [20]. Obviously, an initial step of membrane damage involves the binding of protein aggregates with the surface of lipid bilayer. In many cases such binding is driven by electrostatic protein-lipid interactions and may lead to significant change of the membrane surface charge, thereby influencing a number of electrostatically-controlled membrane processes. In view of a high structural and compositional heterogeneity of biological membranes, a common approach to investigating the above processes is based on the use of the model systems containing isolated proteins in a certain conformational and aggregation state and lipid vesicles (liposomes) whose lipid components and physicochemical parameters can be varied in a wide range.

In the present study we used the model protein-lipid systems containing as a protein component lysozyme or serum albumin in the native or fibrillar states and multilamellar lipid vesicles composed of zwitterionic lipid phosphatidylcholine and anionic lipid cardiolipin. Lysozyme is a well-characterized multifunctional cationic protein possessing bactericidal, antitumor and immunomodulatory properties. The mutants of human lysozyme (I56T, F57I, W64R, D67H) undergo pathological fibrillization implicated in etiology of familial nonneuropathic systemic amyloidosis, a disease affecting kidney, liver and spleen [25]. Serum albumin is an anionic protein that performs a number of physiological functions associated with the binding, transport and distribution of biologically active compounds. Being prone to amyloid transformation under denaturing conditions, this protein is extensively employed in the model studies of the protein aggregation and fibrillization [26,27]. Our goal was to obtain a direct evidence for the binding of amyloid fibrils of lysozyme and albumin to lipid vesicles and to compare the effects of the native and fibrillar proteins on the surface charge of lipid bilayer through measuring the electrophoretic mobility of the uni- and multilamellar lipid vesicles.

EXPERIMENTAL SECTION

Materials

Egg yolk phosphatidylcholine (PC) and beef heart cardiolipin (CL) were purchased from Avanti Polar Lipids (Alabaster, AL). Hen egg white lysozyme and bovine serum albumin were from Sigma (St. Louis, MO, USA). All other chemicals were of analytical grade and used without further purification.

Preparation of lipid vesicles

Multilamellar lipid vesicles (MLV) were prepared from PC mixture with 20 mol% of CL. Appropriate amounts of lipid stock solutions were mixed in ethanol and evaporated to dryness under a vacuum. The obtained thin lipid films were hydrated with 1.2 ml of 5 mM sodium phosphate buffer (pH 7.4) at room temperature. The acquired lipid vesicles were visualized using the optical and fluorescence microscopy techniques (Fig. 1). To obtain the fluorescence microscopy images, the lipid vesicles were stained with acridine orange.

To prepare the large unilamellar liposomes (LUV) with the 100-nm diameter, the suspension of MLV was subjected to 15 passes through a 100-nm pore size polycarbonate filter (Millipore, Bedford, USA). Hereafter, the MLV and LUV employed in the electrophoretic measurements are denoted as MLV_{CL20} and LUV_{CL20} , respectively.

Measurements of electrophoretic mobility and zeta-potential

The electrophoretic mobility of MLV suspended in 5 mM sodium phosphate buffer (pH 7.4) was measured in a laterally oriented electrophoretic chamber. The current through the cell was determined with an ammeter. Liposome migration in the stationary Smoluchowski layer was observed with a BIOLAM microscope at 20 °C. The rate of migration was determined from the time required for liposomes to pass a fixed distance (79.17 μ m) upon the change of the voltage polarity. The electrophoretic mobility (u) was calculated as $u = l/tE$, where l is the distance covered by a vesicle in time t , E is the electric field strength. The u value was averaged over 20-40 measurements. Statistical analysis of the experimental data was performed in Mathcad 11. The Helmholtz-Smoluchowski equation was used to calculate the electrokinetic potential $\zeta = u\eta/\varepsilon_r\varepsilon_0$, here η denotes the viscosity of the medium, ε_r and ε_0 are the

dielectric constants of the aqueous phase and vacuum, respectively. The zeta-potentials of the unilamellar lipid vesicles were determined using Zetasizer Nano ZS Malvern Instruments apparatus, equipped by the temperature controller. Specifically, 0.8 ml of the samples were injected in Zeta dip cell, and the measurement was performed at 20 °C. The zeta-potential values were determined as the average of 3 repeats.

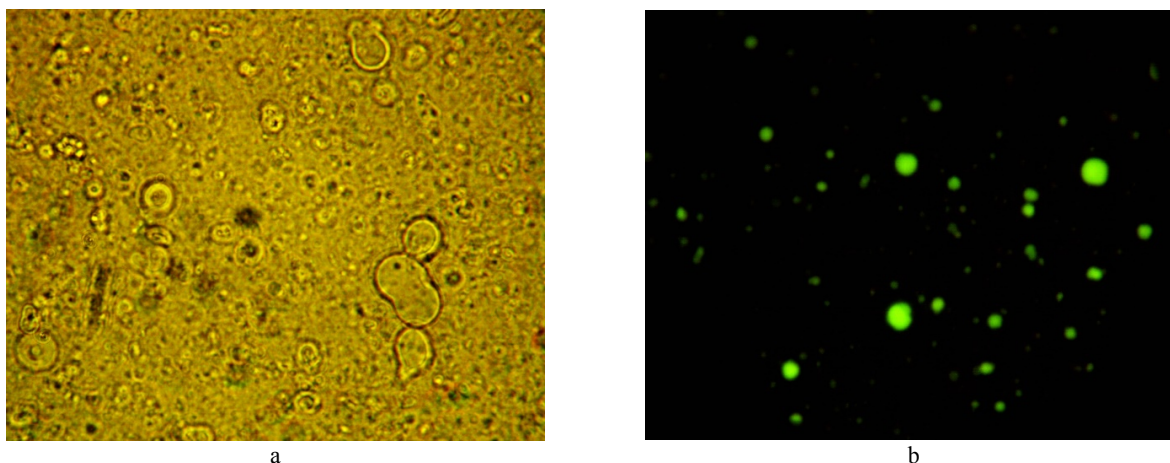


Fig. 1. The images of multilamellar lipid vesicles
a - obtained using optical microscopy, b - obtained using fluorescence microscopy

Preparation of amyloid fibrils

Amyloid fibrils of lysozyme and albumin were produced by dissolving the protein (10 mg/ml) in 10 mM glycine buffer, pH 2, and incubating for 2 weeks at 60°C. Fibril formation was assessed by transmission electron microscopy (Fig. 2). A 5- μ l drop of concentrated protein solution was applied to a carbon-coated Formvar grid, and blotted after 60 sec. A 5- μ l drop of 2% uranyl acetate solution was placed on the grid, blotted after 30 sec, washed by deionized water, air dried and examined using a Tecnai 12 Bio-Twin transmission electron microscope operating at an accelerating voltage of 80 kV.

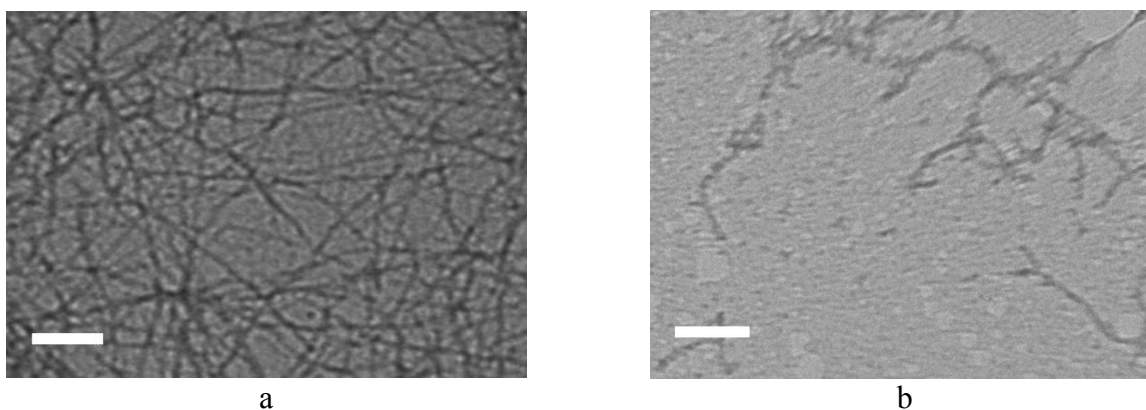


Fig. 2. TEM images fibrils formed at pH 2.0, 60 °C
a - hen egg white lysozyme, b - bovine serum albumin. Scale bars are 200 nm (a) and 50 nm (b)

RESULTS AND DISCUSSION

Liposomes are formed due to self-assembly of amphiphilic lipid molecules in an aqueous phase into spherical or quasispherical vesicles consisting of an aqueous central cavity and a single bilayer shell (unilamellar vesicles) or multiple bilayer shells (multilamellar vesicles). The surface potential of lipid vesicles (ψ_s) is created by the charges of the lipid headgroups, adsorbed ions and counterions residing at the lipid-water interface [1,2]. The surface potential is determined by the content and type of the charged lipids and the concentration of protons and ions in the adjacent layer. The simplest description of the membrane surface potential is provided by the Gouy-Chapman-Stern double layer theory which is valid when the charge is uniformly distributed over a planar surface [28]. In terms of this theory the electrostatic free energy of a membrane with the area $S_m = S_L L_{out}$ is given by [29]:

$$F_{el}^S = \frac{2k_B T S_m}{e} \left(\sigma \sinh^{-1} \left(\frac{\sigma}{a} \right) - \sqrt{a^2 + \sigma^2} + a \right), \quad (1)$$

where σ is the surface charge density, $a = \sqrt{2\pi^{-1}\epsilon c N_A k_B T}$; N_A is Avogadro's number, ϵ is the dielectric constant, c is the molar concentration of monovalent ions, T is the temperature, k_B is the Boltzmann's constant, L_{out} is the concentration of accessible lipids which for unilamellar liposomes is related to the total lipid concentration (L) as $L_{out} = 0.5L$; S_L is the mean area per lipid molecule:

$$S_L = f_{PC} S_{PC} + f_A S_A, \quad (2)$$

here f_{PC} , f_A are the mole fractions of PC and the anionic phospholipid; S_{PC} is the mean area per PC molecule (0.65 nm²); S_A is the mean area per molecule of anionic phospholipid taken as and 1.2 nm² for CL. The surface charge density (σ) is determined by the mole fraction of anionic phospholipid (f_A) and the degree of its ionization (α):

$$\sigma = \frac{-e\alpha f_A L_{out}}{S_m}, \quad (3)$$

where e is the elementary charge, $\alpha = 1$ for phosphatidylglycerol or phosphatidylserine, and $\alpha = 2$ for cardiolipin [30]. The electrostatic surface potential of a membrane (ψ_s) is related to the surface charge density as:

$$\psi_s = \frac{2k_B T}{e} \sinh^{-1}\left(\frac{\sigma}{a}\right). \quad (4)$$

The so-called zeta potential (ζ) derived from the measurements of electrophoretic mobility of the lipid vesicles or cells can be regarded as a component of the surface membrane potential ψ_s . ζ - potential is a potential at the plane of shear separating the compact and diffuse parts of the double layer. The plane of share may reside up to 2-3 water diameter away from the surface. In the compact part, adjacent to the surface, the ions are immobilized and move together with the vesicle or cell, while in the diffuse part the ions are mobile and distribute according to the laws of statistical mechanics. The compact part of the double layer is determined by the inner and outer Helmholtz planes. The inner plane, residing at the distance $\sim 0.1 - 0.2$ nm from the membrane, represents the plane of closest approach of nonhydrated ions to the surface. The outer Helmholtz plane is located at ~ 0.6 nm from the surface and characterizes the closest approach of the hydrated ions. The share plane lies close to the outer Helmholtz plane [31-33]. The calculation of the average electrophoretic mobility of colloidal particles requires the solution of a set of partial differential equations (electrokinetic equations) for the electrical potential, ion densities and fluid velocities in the suspending electrolyte. The electromigration of lipid vesicles is an especially complex process that cannot be described by the classical electrokinetic theory, postulating a direct relation between the electrophoretic mobility (u) and the particle charge (q):

$$u = q / 6\pi\eta R, \quad (5)$$

here R is the particle radius. However, for large particles, such as colloids or liposomes, this equation is not valid and special models have been developed for these systems [34-35]. In contrast to the classical electrokinetic theory, these models allow for the effects of relaxation and retardation, both of which reduce the rate of electrophoretic migration of large particles. Relaxation arises from the distortion of the ionic atmosphere during the particle movement, while retardation is brought about by the enhancement of hydrodynamic drag when counterions move in the opposite to particle direction in the applied field. Within the framework of the electrokinetic models proposed for the large colloidal particles the extent of relaxation effects is treated as being dependent on the inverse thickness of the electric double layer (or inverse Debye length, $\kappa = (2e^2 N_A c / k_B T \epsilon_0 \epsilon_r)^{1/2}$), the particle radius R and ζ - potential. One of the existing colloidal theories applicable to describing the electromigration of liposomes has been suggested by O'Brien [35,36]. According to this theory, the electrophoretic mobility of spherical particles with $R \gg \kappa$ is given by:

$$u = \frac{3e\zeta}{2k_B T} + \frac{3M\lambda}{2(1+\lambda M)} \left(1 - \exp\left(\frac{-e|z_i\zeta|}{2k_B T}\right) \right) \left(\gamma - \frac{e\zeta}{k_B T} \right). \quad (6)$$

$$\lambda = \exp\left(\frac{-e|z_i\zeta|}{2k_B T}\right) / \alpha\kappa R; \quad \alpha = |z_i| \left(\frac{n_i^\infty}{2}\right)^{1/2}; \quad M = 1 + \frac{3\sum_j n_j^\infty m_j}{z_i^2 \sum_k n_k^\infty}; \quad m_j = \frac{\epsilon(k_B T)^2}{6\pi\eta e^2 D_j},$$

where summation is performed over ionic species for which $z_{k,j} = z_i$, m_j is the nondimensional ionic drag coefficient, D_j is the ion diffusivity, $\gamma = 2 \ln 2 / z$ for a symmetric two species electrolyte, z is the magnitude of ion valency, index i refers to the counterion with the highest valency, n_i^∞ is the equilibrium ion density beyond the

double layer, if there are more than one counterion species, n_i^∞ should be replaced by a sum over the bulk densities of these ions. Despite being more adequate in interpreting the electrokinetic behavior of liposomes, Eq. (6) is valid for the rigid and nondeformable spherical particles. However, lipid vesicles possess intrinsic deformability, so that they can undergo a variety of shape deformations. This property can to some extent be taken into account by considering the lipid vesicles as prolate spheroids whose electrophoretic mobility is expressed by the equation [36]:

$$u = \frac{\varepsilon\zeta}{\eta} + \frac{\varepsilon k_B T}{3\eta e} \left(\frac{e\zeta}{k_B T} - \gamma \right) \left[g^0(\beta) + 2g^1(\beta) \right], \quad (7)$$

where $g^0(\beta)$ pertains to the velocity components of ellipsoids whose major axis is aligned with the applied field, while $g^1(\beta)$ characterizes the ellipsoids with major axis transverse to the field. At last, most electrokinetic theories consider the particles with a uniform charge distribution whose ionic atmosphere is only slightly distorted by the applied field, ignoring the possibility of field-induced charge migration over the particle surface which may occur in the fluid lipid bilayers [37,38]. It has been demonstrated that charge migration may lead to polarization and elongation of lipid vesicles along the direction of the applied field [39,40]. Thus, the factors, such as relaxation, retardation, deformability and field-induced polarization must be taken into account while interpreting the electrokinetic behavior of liposomes.

The alterations of the electrophoretic mobility of MLV_{CL20} upon the adsorption of the native or fibrillar lysozyme and serum albumin are shown in Fig. 3. As expected, in the absence of protein the u value has the negative sign. However, at varying the protein concentration (P) electrophoretic mobility was found to display a complex behavior involving a complete neutralization of liposome charge or its reversal.

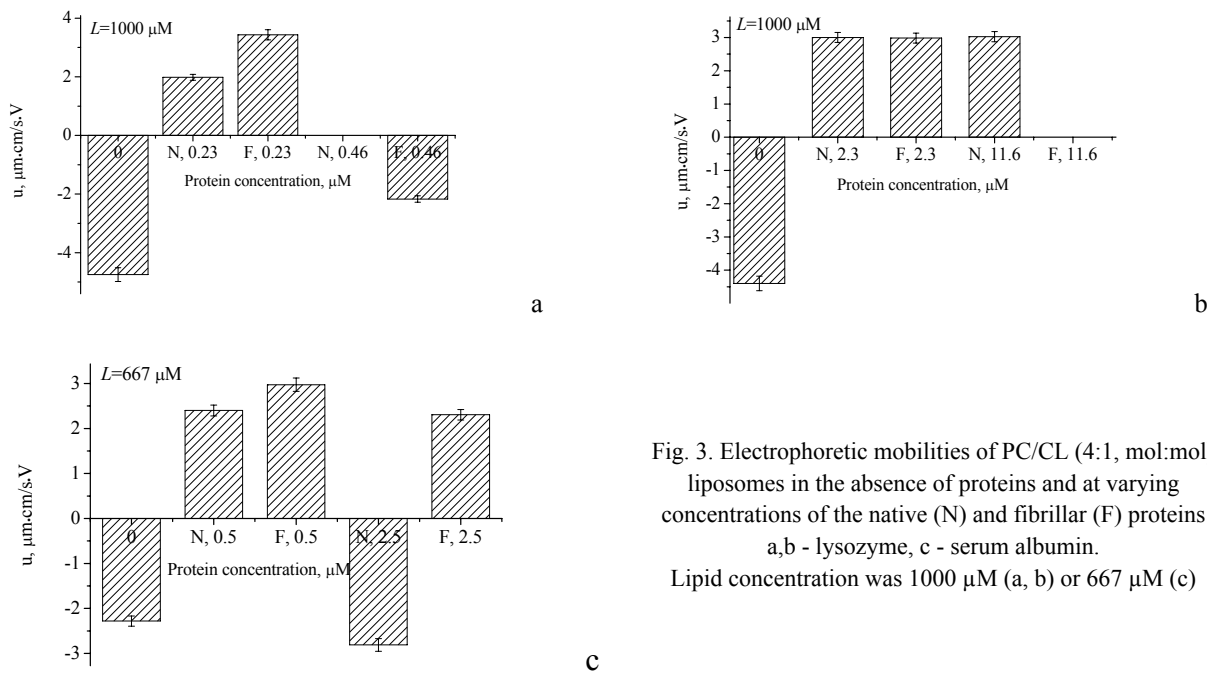


Fig. 3. Electrophoretic mobilities of PC/CL (4:1, mol:mol) liposomes in the absence of proteins and at varying concentrations of the native (N) and fibrillar (F) proteins a,b - lysozyme, c - serum albumin. Lipid concentration was $1000 \mu\text{M}$ (a, b) or $667 \mu\text{M}$ (c)

It appeared that even at the minimum concentration of the native lysozyme ($0.23 \mu\text{M}$) the surface charge of liposomes changes its sign from negative to positive, i.e. the protein covers all accessible surface area of MLV_{CL20} . Given that the radius of lysozyme monomers is $\sim 1.9 \text{ nm}$, the cross-section of structurally unperturbed protein is $\sim 11.3 \text{ nm}^2$, i.e. one protein molecule is capable of covering at least 15 lipid molecules (with the mean area per lipid molecule $S_L \sim 0.76 \text{ nm}^2$). Assuming the monolayer adsorption of lysozyme onto lipid vesicles, one obtains that upon complete protein binding the accessible surface area at $L = 1000 \mu\text{M}$ equals $\sim 2.6 \text{ nm}^2$, i.e. only $3.4 \mu\text{M}$ of lipids are capable of associating with protein. According to the optical and fluorescence microscopy data, the diameter of MLV_{CL20} falls in the range $5\text{-}40 \mu\text{m}$. Taking into account the mean area per lipid, it follows that the outer monolayer of one $40 \mu\text{m}$ -MLV contains ~ 132 lipid molecules, while the aqueous cavity of such vesicle may incorporate many vesicles of the smaller size. As a consequence, the amount of lipids accessible for the protein binding significantly decreases, and the actual ratio $L_{out}/P \sim 15$ will be much less than the maximum possible value of this parameter corresponding to the case of lipid self-assembly into unilamellar vesicles. Thus, increase of the protein concentration creates the conditions for multilayer adsorption since L_{out}/P will decrease. The factors, such as the alterations in the protein tertiary structure, asymmetry of the distribution of positively and negatively charged groups on the protein surface, the extent of exposure

of hydrophobic patches, the orientation of the protein molecule relative to lipid-water interface, may lead to the alternative changes of the sign of vesicle charge depending of the number of the adsorbed layers. Indeed, as can be seen in Fig. 3 and Table 1, as the concentration of the native lysozyme increases from 0.23 μM to 0.46 μM , the liposome charge becomes neutral, while at further increase of P value till 2.3 μM and 11.6 μM the vesicles again acquire a positive charge. A somewhat different situation was observed for fibrillar lysozyme – with increase of the protein concentration from 0.23 μM to 0.46 μM the charge of liposomes changes its sign from positive to negative, then, at $P = 2.3 \mu\text{M}$ the charge becomes positive, and at $P = 11.6 \mu\text{M}$ the vesicle charge was completely neutralized.

Table 1.
Electrokinetic properties of the multilamellar PC/CL (4:1, mol:mol) vesicles in the presence of the native or fibrillar lysozyme and serum albumin

Protein	Lipid concentration, μM	Protein concentration, μM	u , $\mu\text{m}\cdot\text{cm}/\text{s}\cdot\text{V}$	ζ , mV	ψ_s , mV	σ , C/m^2
Fibrillar lysozyme	1000	0	-4.40 ± 0.48	-62.3	-66.0	$-1.4\cdot 10^{-2}$
	1000	0.23	3.43 ± 0.29	48.5	46.0	$8.6\cdot 10^{-3}$
	1000	0.46	-2.17 ± 0.16	-30.7	-32.3	$-5.6\cdot 10^{-3}$
	1000	2.3	2.98 ± 0.20	42.2	44.5	$8.2\cdot 10^{-3}$
	1000	11.6	0	0	0	0
Native lysozyme	1000	0.23	1.98 ± 0.21	28.0	29.4	$5.1\cdot 10^{-3}$
	1000	0.46	0	0	0	0
	1000	2.3	3.00 ± 0.27	42.5	44.8	$8.3\cdot 10^{-3}$
	1000	11.6	3.03 ± 0.33	42.9	45.3	$8.4\cdot 10^{-3}$
Fibrillar serum albumin	667	0	-2.28 ± 0.21	-32.3	-30.0	$-5.2\cdot 10^{-3}$
	667	0.5	2.97 ± 0.28	42.0	43.0	$7.9\cdot 10^{-3}$
	667	2.5	2.31 ± 0.19	32.7	34.4	$6.0\cdot 10^{-3}$
Native serum albumin	667	0.5	2.40 ± 0.28	34.0	35.8	$6.3\cdot 10^{-3}$
	667	2.5	-2.81 ± 0.31	-39.8	-42.0	$-7.6\cdot 10^{-3}$

The results of electrophoretic measurements conducted for the systems MLV + native or fibrillar serum albumin also are suggestive of the multilayer protein adsorption. The native albumin at the lower of the examined concentrations, 0.5 μM , caused the reversal of the vesicle charge (Fig. 3c). Although the net charge of bovine serum albumin is negative, *ca.* $-18e$ at physiological pH, the protein surface is abundant of positively charged residues that may form clusters, as illustrated in Fig. 4. At the same time, at the higher protein concentration, 2.5 μM , the liposomes again become negatively charged, probably because of the existence of more than one layers of the adsorbed protein. The fibrillar albumin brought about the reversal of the vesicle charge, with the absence of significant difference between the protein concentrations 0.5 μM and 2.5 μM .

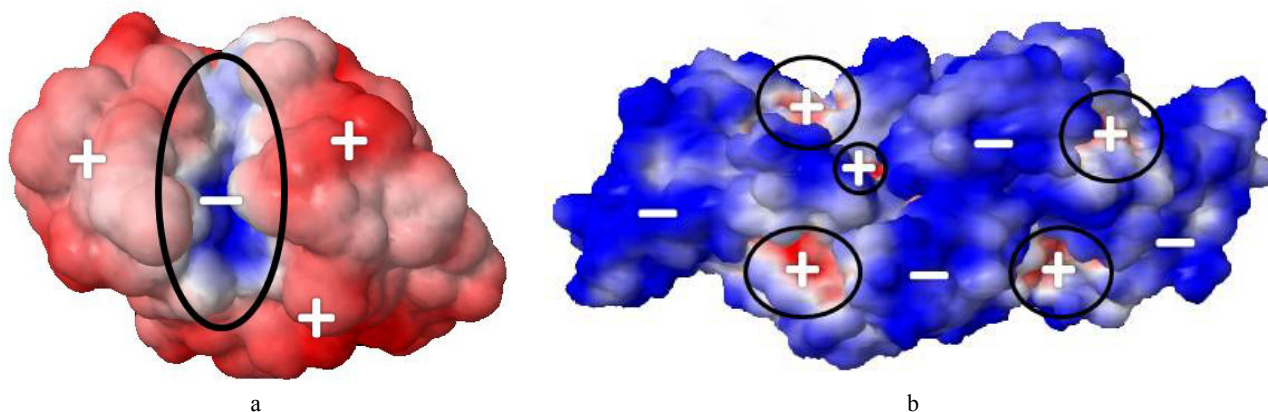


Fig. 4. Surface potential of the proteins

a - hen egg white lysozyme, PDB ID – 5b1f, b - bovine serum albumin, PDB ID – 4f5s.

Clusters of negatively charged lysozyme residues and positively charged albumin residues are highlighted in the figure. The values of the electrostatic surface potential varied from -0.13 V to 0.13 V . The negative and positive values of the surface potential are marked by “-” and “+”, respectively. Protein structures have been prepared using the online available PDB2PQR Server, followed by the calculations of the surface potential performed in the Adaptive Poisson-Boltzmann Solver (APBS) software package (<http://www.poissonboltzmann.org/>)

In contrast to MLV, the dependence of the electrophoretic mobility and corresponding ζ - potential of LUV on the protein concentration was predominantly monotonous, with the u value being gradually decreased with increasing the amount of the adsorbed protein.

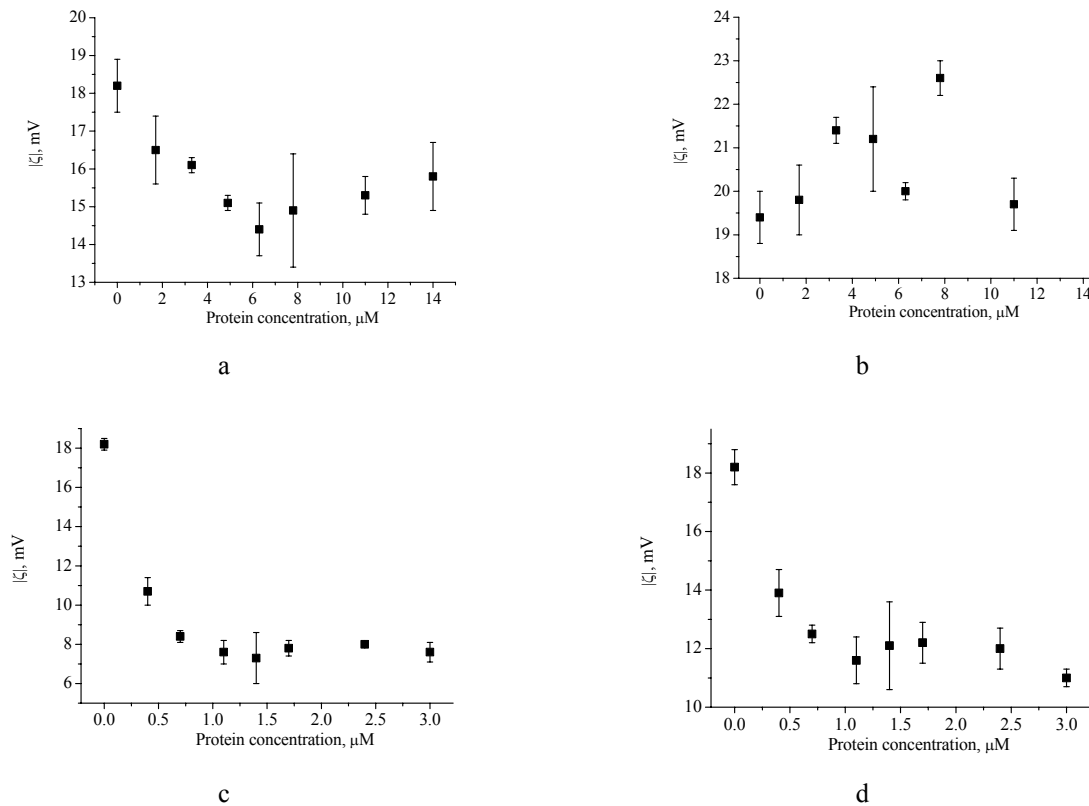


Fig. 5. Dependence of $|\zeta|$ -potential of LUV_{CL20} on the concentration

a - fibrillar lysozyme; b - native lysozyme; c - fibrillar serum albumin; d - native serum albumin
Lipid concentration was 125 μM

This is not surprising since at the same total lipid concentration the vesicle surface area accessible for the protein binding is substantially higher in the suspension of unilamellar liposomes. The only exception was the case of native lysozyme, when the ζ - potential showed even the slight increase of its negative value (Fig. 5b). Under the employed experimental conditions L_{out}/P ratio ranges from ~ 37 till ~ 6 . If there exists only a single layer of the adsorbed protein, as is supposed for all LUV systems, it cannot be excluded that the binding of the native lysozyme to liposome surface is rather strong to achieve nearly complete covering of the membrane surface even at the lowest protein concentration. Despite the total positive charge of lysozyme, the protein bears the clusters of negatively charged residues (Fig. 4) which may impart an additional negative charge to liposome surface.

Table 2.

Electrokinetic properties of the unilamellar PC/CL (4:1, mol:mol) vesicles in the presence of native or fibrillar lysozyme and serum albumin

Protein	Lipid concentration, μM	Protein concentration, μM	u , $\mu\text{m}\cdot\text{cm}/\text{s}\cdot\text{V}$	ζ , mV	ψ_s , mV	σ , C/m^2
Fibrillar lysozyme	125	0	-1.29	-18.2 ± 0.7	-19.2	$-3.0\cdot 10^{-3}$
		1.7	-1.17	-16.5 ± 0.9	-17.3	$-2.7\cdot 10^{-3}$
		3.3	-1.14	-16.1 ± 0.2	-16.9	$-2.7\cdot 10^{-3}$
		4.9	-1.07	-15.1 ± 0.2	-15.8	$-2.5\cdot 10^{-3}$
		6.3	-1.02	-14.4 ± 0.7	-15.1	$-2.4\cdot 10^{-3}$
		7.8	-1.05	-14.9 ± 1.5	-15.6	$-2.5\cdot 10^{-3}$
		11.0	-1.08	-15.3 ± 0.5	-16.0	$-2.5\cdot 10^{-3}$
Native lysozyme	125	0	-1.37	-19.4 ± 0.6	-20.4	$-3.2\cdot 10^{-3}$
		1.7	-1.4	-19.8 ± 0.8	-20.8	$-3.3\cdot 10^{-3}$

Protein	Lipid concentration, μM	Protein concentration, μM	u , $\mu\text{m}\cdot\text{cm}/\text{s}\cdot\text{V}$	ζ , mV	ψ_s , mV	σ , C/m^2
		3.3	-1.51	-21.4±0.3	-22.5	-3.6·10 ⁻³
		4.9	-1.5	-21.2±1.2	-22.3	-3.5·10 ⁻³
		6.3	-1.41	-20.0±0.2	-21.0	-3.3·10 ⁻³
		7.8	-1.6	-22.6±0.4	-23.7	-3.8·10 ⁻³
		11.0	-1.39	-19.7±0.6	-20.7	-3.3·10 ⁻³
Fibrillar serum albumin	125	0	-1.29	-18.2±0.3	-19.2	-3.0·10 ⁻³
		0.4	-0.76	-10.7±0.7	-11.3	-1.8·10 ⁻³
		0.7	-0.59	-8.4±0.3	-8.8	-1.4·10 ⁻³
		1.1	-0.54	-7.6±0.6	-8.0	-1.2·10 ⁻³
		1.4	-0.52	-7.3±1.3	-7.7	-1.2·10 ⁻³
		1.7	-0.55	-7.8±0.4	-8.2	-1.3·10 ⁻³
		2.4	-0.57	-8.0±0.1	-8.4	-1.3·10 ⁻³
Native serum albumin	125	0	-1.29	-18.2±0.6	-19.2	-3.0·10 ⁻³
		0.4	-0.98	-13.9±0.8	-14.6	-2.3·10 ⁻³
		0.7	-0.88	-12.5±0.3	-13.1	-2.1·10 ⁻³
		1.1	-0.82	-11.6±0.8	-12.2	-1.9·10 ⁻³
		1.4	-0.85	-12.1±1.5	-12.7	-2.0·10 ⁻³
		1.7	-0.86	-12.2±0.7	-12.8	-2.0·10 ⁻³
		2.4	-0.85	-12.0±0.7	-12.6	-2.0·10 ⁻³
		3.0	-0.78	-11.0±0.3	-11.6	-1.8·10 ⁻³

Based on the measured values of electrophoretic mobility and ζ - potentials of MLV_{CL20} and LUV_{CL20}, we calculated the surface potential and surface charge density of liposomes assuming that the plane of shear lies at the distance 0.2 nm from the vesicle surface. The distance dependence of electrostatic potential is given by [28]:

$$\psi(x) = \frac{2k_B T}{e} \ln \left[\frac{1 + \beta \exp(-\kappa x)}{1 - \beta \exp(-\kappa x)} \right], \quad \beta = \frac{\exp(e\psi(0)/2k_B T) - 1}{\exp(e\psi(0)/2k_B T) + 1}, \quad (8)$$

here $\psi(0) = \psi_s$. It appeared that ψ_s values determined from the experimental data for both uni- and multilamellar liposomes are much less than the theoretical ψ_s value predicted by the Gouy-Chapman theory (-153 mV). This may be explained by the aforementioned effects of relaxation and retardation which reduce the rate of electromigration along with other phenomena specific for soft particles like lipid vesicles [41], and render the classical double layer theory not strictly applicable for the examined systems.

CONCLUSIONS

- The effect of the native or fibrillar lysozyme and serum albumin on the electrokinetic properties of negatively charged uni- and multilamellar liposomes from the zwitterionic lipid phosphatidylcholine and anionic lipid cardiolipin has been studied using the microelectrophoresis technique. In terms of the double layer theory the parameters, such as the ζ - potential, the surface electrostatic potential and surface charge density of the lipid vesicles have been determined upon varying the lipid-to-protein molar ratio.
- The nonmonotonous dependence of the electrokinetic parameters on the protein concentration and reversal of the liposome charge observed for the multilamellar lipid vesicles have been interpreted as a manifestation of multilayer protein adsorption on the liposomal surface.
- The predominant tendency in the electrokinetic behavior of unilamellar liposomes lies in the gradual decrease of the ζ - potential with increasing the protein concentration, suggesting the existence of a single layer of the adsorbed protein.
- The revealed differences in the effect of the native and fibrillar protein forms on the charge of liposomal membranes point to the distinct lipid-associating abilities of the monomeric and aggregated proteins.

REFERENCES

1. Cevc G. Membrane electrostatics // Biochim. Biophys. Acta. – 1990. – Vol. 1031. – P. 311-382.
2. Demchenko A.P., Yesylevskyy S.O. Nanoscopic description of biomembrane electrostatics: results of molecular dynamics simulations and fluorescence probing // Chem. Phys. Lipids. – 2009. – Vol. 169. – P. 63-84.
3. Cho W.H., Stahelin R.V. Membrane-protein interactions in cell signaling and membrane trafficking // Annu. Rev. Biophys. Biomol. Struct. – 2005. – Vol. 34. – P. 119-151.

4. Murray D., Arbuzova A., Honig B., McLaughlin S. The role of electrostatic and nonpolar interactions in the association of peripheral proteins with membranes // *Pept. Lipid Interact.* – 2002. – Vol. 52. – P. 277-307.
5. Mulgrew-Nesbitt A., Diraviyam K., Wang J.Y., Singh S., Murray P., Li Z.H., L. Rogers, Mirkovic N., Murray D. The role of electrostatics in protein–membrane interactions // *Biochim. Biophys. Acta.* – 2006. – Vol. 1761. – P. 812-826.
6. Bazzi M.D., Nelsestuen G.L. Association of protein kinase C with phospholipid vesicles // *Biochemistry.* – 1987. – Vol. 26 – P.115-122.
7. Newton A.C., Koshland D.E. Regulation of protein kinase C activity by lipid // *Biophys. J.* – 1989. – Vol. 55. – P. 209a.
8. Smejtek P., Wang S.R. Adsorption to dipalmitoylphosphatidylcholine membranes in gel and fluid state: pentachlorophenolate, dipicrylamine, and tetraphenylborate // *Biophys. J.* – 1990. – Vol. 58. – P. 1285-1294.
9. Gennis R.B. *Biomembranes: Molecular Structure and Function.* - New York: Springer-Verlag, 1989.
10. Anderluh G., Lakey J.H. Disparate proteins use similar architectures to damage membranes // *Trends Biochem. Sci.* – 2008. – Vol. 33. – P. 482-490.
11. Ben-Tal N., Honig B., Miller C., McLaughlin S. Electrostatic binding of proteins to membranes. Theoretical predictions and experimental results with charybdotoxin and phospholipid vesicles // *Biophys. J.* – 1997. – Vol. 73. – P. 1717-1727.
12. Zschornig O., Opitz F., Muller M. Annexin A4 binding to anionic phospholipid vesicles modulated by pH and calcium // *Eur. Biophys. J.* – 2007. – Vol. 36. – P. 415-424.
13. Kurganov B., Doh M., Arispe N. Aggregation of liposomes induced by the toxic peptides Alzheimer's A beta s, human amylin and prion (106–126): facilitation by membrane-bound G(M1) ganglioside // *Peptides.* – 2004. – Vol. 25. – P. 217–232.
14. Cho W.J., Jena B.P., Jeremic A.M. Nano-scale imaging and dynamics of amylinmembrane interactions and its implication in type II diabetes mellitus // *Methods Cell Biol.* – 2008. – Vol. 90. – P. 267-286.
15. Davidson W.S., Jonas A., Clayton D.F., George J.M. Stabilization of alpha-synuclein secondary structure upon binding to synthetic membranes // *J. Biol. Chem.* – 1998. – Vol. 273. – P. 9443-9449.
16. Elbaum-Garfinkle S., Ramlall T., Rhoades E. The role of the lipid bilayer in tau aggregation // *Biophys. J.* – 2010. – Vol. 98. – P. 2722-2730.
17. Trexler A.J., Rhoades E. Alpha-synuclein binds large unilamellar vesicles as an extended helix // *Biochemistry.* – 2009. – Vol. 48. – P. 2304-2306.
18. Stefani M. Protein misfolding and aggregation: new examples in medicine and biology of the dark side of the protein world // *Biochim. Biophys. Acta.* – 2004. – Vol. 1739. – P. 5-25.
19. Zerovnik E. Amyloid-fibril formation. Proposed mechanisms and relevance to conformational disease // *Eur. J. Biochem.* – 2002. – Vol. 269. – P. 3362-3371.
20. Stefani M. Generic cell dysfunction in neurodegenerative disorders: role of surfaces in early protein misfolding, aggregation, and aggregate cytotoxicity // *Neuroscientist.* – 2007. – Vol. 13. – P. 519-531.
21. Meratan A.A., Ghasemi A., Nemat-Gorgani M. Membrane integrity and amyloid cytotoxicity: a model study involving mitochondria and lysozyme fibrillation products // *J. Mol. Biol.* – 2011. – Vol. 409. – P. 826-838.
22. Caughey B., Lansbury P.T., Protofibrils, pores, fibrils, and neurodegeneration: separating the responsible protein aggregates from the innocent bystanders // *Annu. Rev. Neurosci.* – 2003. – Vol. 26. – P. 267-298.
23. Sparr E., Engel M.F.M., Sakharov D.V., Sprong M., Jacobs J., de Kruijff B., Hoppener J., Killian J.A. Islet amyloid polypeptide-induced membrane leakage involves uptake of lipids by forming amyloid fibers // *FEBS Lett.* – 2004. – Vol. 577. – P. 117-120.
24. Arispe N., Rojas E., Pollard H. Alzheimer's disease amyloid beta protein forms calcium channels in bilayer membranes: blockade by tromethamine and aluminium // *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* – 2003. – Vol. 89. – P. 10940-10944.
25. Pepys M.B., Hawkins P.N., Booth D.R., Vigushin D.M., Tennent G.A., Souter A.K., Totty N., Nguyen O., Blake C.C., Terry C.J., Feast T.G., Zalin A.M., Hsuan J.J. Human lysozyme gene mutations cause hereditary systemic amyloidosis // *Nature.* – 1993. – Vol. 362. – P. 553-557.
26. Sen P., Fatima S., Ahmad B., Khan R.H. Interactions of thioflavin T with serum albumins: Spectroscopic analyses // *Spectrochimica Acta Part A.* – 2009. – Vol. 74. – P. 94-99.
27. Arasteh A., Habibi-Rezaei M., Ebrahim-Habibi A., Moosavi-Movahedi A.A. Response surface methodology for optimizing the bovine serum albumin fibrillation // *Protein J.* – 2012. – Vol. 31. – P. 457-465.
28. McLaughlin S. The electrostatic properties of membranes // *Annu. Rev. Biophys. Biophys. Chem.* – 1989. – Vol. 18. – P. 113-136.
29. Jahnig F. Electrostatic free energy and shift of the phase transition for charged lipid membranes // *Biophys. Chem.* – 1976. – Vol. 4. – P. 309-318.
30. Malyshka D., Pandiscia L.A., Schweitzer-Stenner R. Cardiolipin containing liposomes are fully ionized at physiological pH. An FT-IR study of phosphate group ionization // *Vib. Spectrosc.* – 2014. – Vol. 75. – P. 86-92.
31. Chan D., Horn R.G. The drainage of thin liquid films between solid surfaces // *J. Chem. Phys.* – 1985. – Vol. 83. – P. 5311-5324.
32. Israelachvili J. Measurement of the viscosity of liquids in very thin films // *J. Colloid Interface Sci.* – 1986. – Vol. 110. – P. 263-271.
33. Horn R.G., Smith D.T., Haller W. Surface forces and viscosity of water measured between silica sheets // *Chem. Phys. Lett.* – 1989. – Vol. 162. – P. 404-408.
34. O'Brien R.W., Hunter R.J. The electrophoretic mobility of large colloidal particles // *Can. J. Chem.* – 1981. – Vol. 59. – P. 1878-1887.
35. O'Brien R.W. The solution of the electrokinetic equations for colloidal particles with thin double layer // *J. Colloid Interface Sci.* – 1982. – Vol. 92. – P. 204-216.
36. O'Brien R.W., Ward D.N. The electrophoresis of a spheroid with a thin double layer // *J. Colloid Interface Sci.* – 1988. – Vol. 121. – P. 402-413.
37. Jaffe L.F. Electrophoresis along cell membranes // *Nature.* – 1977. – Vol. 265. – P. 600-602.
38. Poo M., Lam J.W., Orida N., Chao A.W. Electrophoresis and diffusion in the plane of the cell membrane // *Biophys. J.* – 1979.

- P. 1-21.
39. Groves J., Boxer S., McConnell H. Electric field-induced critical demixing in lipid bilayer membranes // Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. – 1998. – Vol. 95. – P. 935-938.
 40. Sokirko A., Pastushenko V., Svetina S., Zeks B. Deformation of a lipid vesicle in an electric field: a theoretical study // Bioelectrochem. Bioenerg. – 1994. – Vol. 34. – P. 101-107.
 41. Pysker M.D., Hayes M.A. Examination of the electrophoretic behavior of liposomes // Langmuir. – 2004. – Vol. 20. – P. 4369-4375.

PACS: 63.20.-e, 63.20.Ry, 05.30.Jp

DYNAMICS OF BOSE-EINSTEIN CONDENSATE WITH ACCOUNT OF PAIR CORRELATIONS

Yu.M. Poluektov^{1,2}, A.M. Arslanaliev²

¹*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"*

1, Akademicheskaya Str., 61108 Kharkov, Ukraine

²*Kharkov V.N. Karazin National University*

Sq. Svobody 4, Kharkov, 61022, Ukraine

e-mail: yuripoluektov@kipt.kharkov.ua

Received March 27, 2017

It is shown that for the system of Bose particles it can be obtained the chain of equations for the quasiaverages of the products of field operators, being similar to the Bogolyubov-Born-Green-Kirkwood-Yvon chain in the theory of classical gases. For the case when it is sufficient to confine ourselves to taking account of the quasiaverages of only one field operator and the products of two field operators, the closed system of dynamic equations for Bose-Einstein condensate at zero temperature is obtained which accounts for the one-particle condensate and pair correlations. A spatially homogeneous state in the absence of the external field is considered and the spectrum of small oscillations of the condensate in this case with account of pair correlations is explored. It is shown that the spectrum of collective excitations has two branches: the sound wave branch and the branch with an energy gap at zero momentum. The first of the branches approaches the Bogolyubov spectrum at low momenta, and the second branch – at large momenta. It is discussed the possibility of existence of the quasiparticle excitations with an energy gap in the superfluid helium in connection with the experiment on the absorption of microwave radiation.

KEY WORDS: Bose-Einstein condensate, anomalous and normal averages, pair correlations, sound branch of elementary excitations, elementary excitations with energy gap

ДИНАМІКА БОЗЕ-ЕЙНШТЕЙНІВСЬКОГО КОНДЕНСАТУ З УРАХУВАННЯМ ПАРНИХ КОРЕЛЯЦІЙ

Ю.М. Полуєтков^{1,2}, А.М. Арсланалієв²

¹*Національний науковий центр "Харківський фізико-технічний інститут"*

61108, вул. Академічна, 1, Харків, Україна

²*Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна*

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

Показано, що в системі бозе-частинок для квазісередніх від добутків польових операторів може бути отримано ланцюжок рівнянь, аналогічний ланцюжку Боголюбова-Борна-Гріна-Кірквуда-Івона в теорії класичних газів. Для випадку, коли досить обмежитися урахуванням тільки квазісередніх від одного польового оператора і добутків двох операторів, отримано замкнуту систему динамічних рівнянь для бозе-ейнштейнівського конденсату при нульовій температурі, яка враховує одночастинковий конденсат і парні кореляції. Розглянуто просторово-однорідний стан при відсутності зовнішнього поля і досліджений спектр малих коливань конденсату в цьому випадку при урахуванні парних кореляцій. Показано, що спектр колективних збуджень має дві гілки, звукову і гілку з енергетичною щільною при нульовому імпульсі. Перша з гілок наближається до боголюбовського спектру при малих імпульсах, а друга - при великих. Обговорюється можливість існування квазічастинкових збуджень з енергетичною щільною у надплинному гелії у зв'язку з експериментом по поглинанню НВЧ випромінювання.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: бозе-ейнштейнівський конденсат, аномальні і нормальні середні, парні кореляції, звукова гілка елементарних збуджень, елементарні збудження з енергетичною щільною

ДИНАМИКА БОЗЕ-ЭЙНШТЕЙНОВСКОГО КОНДЕНСАТА С УЧЕТОМ ПАРНЫХ КОРРЕЛЯЦИЙ

Ю.М. Полуєтков^{1,2}, А.М. Арсланалієв²

¹*Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт"*

61108, Академическая, 1, Харьков, Украина

²*Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина*

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

Показано, что в системе бозе-частиц для квазисредних от произведений полевых операторов может быть получена цепочка уравнений, аналогичная цепочке Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона в теории классических газов. Для случая, когда достаточно ограничиться учетом только квазисредних от одного полевого оператора и произведений двух операторов, получена замкнутая система динамических уравнений для бозе-ейнштейновского конденсата при нулевой температуре, учитывающая одночастичный конденсат и парные корреляции. Рассмотрено пространственно-однородное состояние в отсутствие внешнего поля и исследован спектр малых колебаний конденсата в этом случае при учете парных корреляций. Показано, что спектр коллективных возбуджений имеет две ветви, звуковую и ветвь с энергетической щелью при нулевом импульсе. Первая из ветвей приближается к боголюбовскому спектру при малых импульсах, а вторая – при больших. Обсуждается возможность существования квазичастичных возбуджений с энергетической щелью в сверхтекучем гелии в связи с экспериментом по поглощению СВЧ излучения.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: бозе-ейнштейновский конденсат, аномальные и нормальные средние, парные корреляции, звуковая ветвь элементарных возбуджений, элементарные возбуджения с энергетической щелью

Бозе-эйнштейновский конденсат системы малой плотности слабо взаимодействующих бозе-частиц при нулевой температуре обычно описывается уравнением Гросса-Питаевского [1,2], которое широко используется для исследования конденсатов, создаваемых в магнитных и лазерных ловушках [3,4]. Уравнение Гросса-Питаевского получено в приближении самосогласованного поля, которое не учитывает короткодействующие корреляции частиц. В этом приближении система описывается когерентным вектором состояния [5]. Между тем, учет парных корреляций, существенных на малых расстояниях, оказывается важным даже в системах с малой плотностью, поскольку приводит к качественно новым результатам. Так в разреженном газе классических частиц учет парных корреляций позволяет получить интеграл столкновений в кинетическом уравнении и, следовательно, все эффекты, описываемые уравнением Больцмана [6]. Роль парных корреляций в равновесной бозе - системе с конденсатом исследовалась в работе [7].

Целью данной работы было получение системы динамических уравнений для бозе-эйнштейновского конденсата, с учетом, как одночастичных аномальных средних, так и парных корреляций. Показано, что в системе бозе-частиц для квазисредних от произведений полевых операторов может быть получена цепочка уравнений, аналогичная цепочке Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона в теории классических газов. В случае, когда достаточно ограничиться учетом только квазисредних от одного полевого оператора и произведений двух операторов, получена замкнутая система динамических уравнений для бозе-эйнштейновского конденсата при нулевой температуре, учитывающая одночастичный конденсат и парные корреляции. В работе исследованы малые возмущения на фоне пространственно-однородного равновесного состояния. Показано, что при учете парных корреляций в бозе-эйнштейновском конденсате возникают две ветви элементарных возбуждений. Одна из них имеет звуковой закон дисперсии, а у другой ветви в длинноволновом пределе имеется энергетическую щель. Первая из ветвей становится близкой к боголюбовскому спектру при малых импульсах, а вторая – при больших. Обсуждается возможность существования квазичастичных возбуждений с энергетической щелью в сверхтекучем гелии, в связи с экспериментом по поглощению СВЧ излучения.

УРАВНЕНИЯ ДЛЯ СРЕДНИХ ОТ ПОЛЕВЫХ ОПЕРАТОРОВ

Произвольный оператор в гейзенберговском представлении $A(t) = e^{\frac{iHt}{\hbar}} A(0) \exp e^{-\frac{iHt}{\hbar}}$ подчиняется динамическому уравнению

$$i\hbar \frac{\partial A}{\partial t} = [A, H], \tag{1}$$

где в представлении вторичного квантования гамильтониан может быть записан в виде суммы операторов кинетической энергии и энергии парного взаимодействия $H = H_1 + H_2$, причем

$$H_1 = \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 H(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \Psi^+(\mathbf{r}_1, t) \Psi(\mathbf{r}_2, t),$$

$$H_2 = \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 U(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) \Psi^+(\mathbf{r}_1, t) \Psi^+(\mathbf{r}_2, t) \Psi(\mathbf{r}_2, t) \Psi(\mathbf{r}_1, t). \tag{2}$$

Здесь

$$H(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_1 \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) + [U_0(\mathbf{r}_1) - \mu] \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2), \tag{3}$$

а m - масса бозе-частицы, $U_0(\mathbf{r})$ - энергия во внешнем поле, $U(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)$ - потенциал взаимодействия частиц, μ - химический потенциал. Полевые операторы подчиняются стандартным коммутационным соотношениям для бозе-частиц. Пусть $\langle \Psi \rangle$ - это среднее значение полевого оператора. Тогда полевой оператор можем записать, выделив в нем c - числовую и операторную части:

$$\Psi = \langle \Psi \rangle + \xi, \quad \Psi^+ = \langle \Psi \rangle^* + \xi^+. \tag{4}$$

Формула (4) является определением операторов ξ, ξ^+ , которые будем называть надконденсатными. Операторная часть определена так, что для нее выполнены очевидные условия:

$$\langle \xi \rangle = \langle \xi^+ \rangle = 0. \tag{5}$$

Здесь усреднение понимается в смысле квазисредних [8,9] для систем с нарушенной фазовой симметрией. Будем предполагать отличными от нуля как нормальные средние, инвариантные относительно фазового преобразования полевых операторов $\Psi \rightarrow \Psi' = e^{i\alpha} \Psi$, так и аномальные средние, где эта инвариантность нарушена. Отметим, что именно с существованием аномальных средних и связано свойство сверхтекучести. Введем следующее обозначение для аномального среднего от полевого оператора:

$$\eta(\mathbf{r}, t) \equiv \langle \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad \eta^*(\mathbf{r}, t) \equiv \langle \Psi^+(\mathbf{r}, t) \rangle. \tag{6}$$

Средние от произведений нескольких полевых операторов могут быть выражены через средние от произведений операторов ξ, ξ^+ . Например, произведения двух полевых операторов, с учетом (5), имеют вид

$$\begin{aligned}\langle \Psi^+(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}') \rangle &= \eta^*(\mathbf{r})\eta(\mathbf{r}') + \langle \xi^+(\mathbf{r})\xi(\mathbf{r}') \rangle, \\ \langle \Psi(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}') \rangle &= \eta(\mathbf{r})\eta(\mathbf{r}') + \langle \xi(\mathbf{r})\xi(\mathbf{r}') \rangle, \\ \langle \Psi^+(\mathbf{r})\Psi^+(\mathbf{r}') \rangle &= \eta^*(\mathbf{r})\eta^*(\mathbf{r}') + \langle \xi^+(\mathbf{r})\xi^+(\mathbf{r}') \rangle.\end{aligned}\quad (7)$$

Аналогично могут быть записаны и средние от произведения большого числа полевых операторов. Они будут содержать также средние от большого числа надконденсатных операторов вида $\langle \xi^+(\mathbf{r}_1)\xi(\mathbf{r}_2)\xi(\mathbf{r}_3) \rangle$, $\langle \xi^+(\mathbf{r}_2)\xi^+(\mathbf{r}_3)\xi(\mathbf{r}_4) \rangle$, $\langle \xi^+(\mathbf{r}_1)\xi^+(\mathbf{r}_2)\xi(\mathbf{r}_3)\xi(\mathbf{r}_4) \rangle$ и т.д. Полагая последовательно в гейзенберговском уравнении (1) оператор A равным $\Psi, \Psi^+\Psi, \Psi\Psi, \Psi^+\Psi^+, \dots$ и проводя усреднение, получим связанную бесконечную цепочку уравнений для средних $\langle \Psi \rangle, \langle \Psi^+\Psi \rangle, \langle \Psi\Psi \rangle, \langle \Psi^+\Psi^+ \rangle, \dots$. Так уравнение для среднего от полевого оператора (6) имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial \eta(\mathbf{r})}{\partial t} = \int H(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') \eta(\mathbf{r}'') d\mathbf{r}'' + \int U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}''|) \langle \Psi^+(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}) \rangle d\mathbf{r}''.\quad (8)$$

а уравнения для нормальных и аномальных парных корреляций записываются в виде

$$\begin{aligned}i\hbar \frac{\partial \langle \Psi^+(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}') \rangle}{\partial t} &= \int [H(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \langle \Psi^+(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}'') \rangle - H^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') \langle \Psi^+(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}') \rangle] d\mathbf{r}'' - \\ &\quad - \int [U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}''|) - U(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|)] \langle \Psi^+(\mathbf{r}')\Psi^+(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}') \rangle d\mathbf{r}'',\end{aligned}\quad (9)$$

$$\begin{aligned}i\hbar \frac{\partial \langle \Psi(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}') \rangle}{\partial t} &= \int [H(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') \langle \Psi(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}'') \rangle + H(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \langle \Psi(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}'') \rangle] d\mathbf{r}'' + \\ &\quad + U(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \langle \Psi(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}') \rangle - \int [U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}''|) + U(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|)] \langle \Psi^+(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}') \rangle d\mathbf{r}''.\end{aligned}\quad (10)$$

Подобные уравнения могут быть получены и для квазисредних $\langle \Psi^+(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}'') \rangle$, $\langle \Psi^+(\mathbf{r})\Psi^+(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}''') \rangle$, $\langle \Psi^+(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}'')\Psi(\mathbf{r}''') \rangle$, а также квазисредних от произведения большого числа операторов. Таким образом, получим цепочку уравнений, аналогичную известной цепочке Боголюбова – Борна – Грина – Кирквуда – Ивона в кинетической теории классических газов [6].

В дальнейшем конденсат будем описывать с помощью одночастичных средних (6) и ограничимся учетом только парных корреляций надконденсатных операторов, введенных соотношениями (4), определив следующие корреляционные функции:

$$\begin{aligned}g(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) &\equiv \langle \xi^+(\mathbf{r}, t)\xi(\mathbf{r}', t) \rangle, \\ \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) &\equiv \langle \xi(\mathbf{r}, t)\xi(\mathbf{r}', t) \rangle, \quad \tau^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \langle \xi^+(\mathbf{r}, t)\xi^+(\mathbf{r}', t) \rangle.\end{aligned}\quad (11)$$

Средними от произведений большого количества надконденсатных операторов будем пренебрегать, что, по-видимому, допустимо в достаточно разреженной системе. Функции (11) обладают очевидными свойствами симметрии:

$$g(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = g^*(\mathbf{r}', \mathbf{r}, t), \quad \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \tau(\mathbf{r}', \mathbf{r}, t), \quad \tau^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \tau^*(\mathbf{r}', \mathbf{r}, t).\quad (12)$$

При учете только парных корреляций из (8) - (10) следует замкнутая система уравнений для функций $\eta(\mathbf{r}, t)$, $g(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$ и $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$:

$$\begin{aligned}i\hbar \frac{\partial \eta(\mathbf{r})}{\partial t} &= -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \eta(\mathbf{r}) + [U_0(\mathbf{r}) - \mu] \eta(\mathbf{r}) + \\ &\quad + \int d\mathbf{r}'' U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}''|) \left[|\eta(\mathbf{r}'')|^2 \eta(\mathbf{r}) + \eta^*(\mathbf{r}) \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') + \eta(\mathbf{r}'') g^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') + \eta(\mathbf{r}) g(\mathbf{r}'', \mathbf{r}) \right],\end{aligned}\quad (13)$$

$$\begin{aligned}i\hbar \frac{\partial \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}')}{\partial t} &= U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) \eta(\mathbf{r}) \eta(\mathbf{r}') + U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \\ &\quad - \frac{\hbar^2}{2m} (\Delta + \Delta') \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + [U_0(\mathbf{r}) + U_0(\mathbf{r}') - 2\mu] \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \\ &\quad + \int d\mathbf{r}'' U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}''|) \left[|\eta(\mathbf{r}'')|^2 \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \eta(\mathbf{r}) \eta^*(\mathbf{r}'') \tau(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') + \eta(\mathbf{r}) \eta(\mathbf{r}'') g(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') \right] + \\ &\quad + \int d\mathbf{r}'' U(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|) \left[|\eta(\mathbf{r}'')|^2 \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \eta(\mathbf{r}') \eta^*(\mathbf{r}'') \tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') + \eta(\mathbf{r}') \eta(\mathbf{r}'') g(\mathbf{r}'', \mathbf{r}) \right],\end{aligned}\quad (14)$$

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial g(\mathbf{r}, \mathbf{r}')}{\partial t} = & \frac{\hbar^2}{2m} (\Delta - \Delta') g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - [U_0(\mathbf{r}) - U_0(\mathbf{r}')] g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \\
 & - \int d\mathbf{r}'' U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}''|) \left[|\eta(\mathbf{r}'')|^2 g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \eta^*(\mathbf{r}'') \eta(\mathbf{r}'') g(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') + \eta^*(\mathbf{r}'') \eta^*(\mathbf{r}'') \tau(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') \right] + \\
 & + \int d\mathbf{r}'' U(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|) \left[|\eta(\mathbf{r}'')|^2 g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \eta(\mathbf{r}'') \eta^*(\mathbf{r}'') g(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') + \eta(\mathbf{r}'') \eta(\mathbf{r}'') \tau^*(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') \right].
 \end{aligned} \tag{15}$$

Отметим, что для данной системы уравнений выполняется условие инвариантности относительно операции обращения времени, поскольку наряду с решениями $\eta(\mathbf{r}, t)$, $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$, $g(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$ она также имеет решения $\eta^*(\mathbf{r}, -t)$, $\tau^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}', -t)$, $g^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}', -t)$. В пренебрежении парными корреляциями $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}'')$ и $g(\mathbf{r}, \mathbf{r}'')$ уравнение (13) принимает вид уравнения Гросса-Питаевского [1,2]. В дальнейшем, где это не вызовет недоразумения, как и в уравнениях (13) – (15), для краткости не будем явно указывать зависимость средних от времени.

Среднее оператора полного числа частиц N дается формулой

$$\langle N \rangle = \int \left[\eta^*(\mathbf{r}, t) \eta(\mathbf{r}, t) + g(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t) \right] d\mathbf{r}, \tag{16}$$

а плотность числа частиц есть, очевидно $n(\mathbf{r}, t) = \eta^*(\mathbf{r}, t) \eta(\mathbf{r}, t) + g(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t)$.

ЛОКАЛЬНАЯ ФОРМА УРАВНЕНИЙ

Уравнения (13) – (15) являются интегро-дифференциальными. При изучении состояний, медленно изменяющихся на масштабах, сравнимых с характерным радиусом действия потенциала межчастичного взаимодействия $U(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)$, можем перейти к дифференциальным уравнениям. Парные корреляционные функции (11) зависят от двух координат \mathbf{r}, \mathbf{r}' . Удобно перейти к новым координатам $\vec{\rho} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$ и $\mathbf{R} = (\mathbf{r} + \mathbf{r}')/2$, тогда

$$\tau(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \tau\left(\mathbf{R} + \frac{\vec{\rho}}{2}, \mathbf{R} - \frac{\vec{\rho}}{2}\right) \equiv \tau(\mathbf{R}, \vec{\rho}) \text{ и } g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = g\left(\mathbf{R} + \frac{\vec{\rho}}{2}, \mathbf{R} - \frac{\vec{\rho}}{2}\right) \equiv g(\mathbf{R}, \vec{\rho}). \tag{17}$$

От координаты центра масс пары \mathbf{R} эти функции изменяются слабо на расстоянии действия межчастичного потенциала r_0 . Корреляционные функции можно представить в виде

$$\tau(\mathbf{R}, \vec{\rho}) = \sum_{\mathbf{k}} \tau_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) e^{i\mathbf{k}\vec{\rho}}, \quad g(\mathbf{R}, \vec{\rho}) = \sum_{\mathbf{k}} g_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) e^{i\mathbf{k}\vec{\rho}}. \tag{18}$$

В дальнейшем в этих суммах будем учитывать только слагаемое с $\mathbf{k} = 0$. Это означает, что вместо точных функций $\tau(\mathbf{R}, \vec{\rho})$, $g(\mathbf{R}, \vec{\rho})$ будем пользоваться функциями, усредненными по макроскопическому объему $V_0 \sim L^3$, где $L \gg r_0$:

$$\tau_0(\mathbf{R}) \approx V_0^{-1} \int \tau(\mathbf{R}, \vec{\rho}) d\vec{\rho}, \quad g_0(\mathbf{R}) \approx V_0^{-1} \int g(\mathbf{R}, \vec{\rho}) d\vec{\rho}. \tag{19}$$

Такое приближение допустимо, если рассматриваются возмущения на пространственных масштабах, существенно превосходящих радиус действия межчастичного потенциала.

Следует отметить, что в полученных уравнениях существенную роль играет поведение потенциала межчастичного взаимодействия на малых расстояниях. Вид потенциала здесь известен плохо. Более того, во многих модельных потенциалах таких как, например, потенциал Леннард-Джонса, предполагается, что на малых расстояниях он стремится к бесконечности. Отметим, что использование модельных потенциалов, которые стремятся к бесконечности на малых расстояниях, приводит к значительным трудностям, поскольку у таких потенциалов отсутствует их Фурье-образ. Между тем, Требование «непроницаемости» атомов при как угодно высоких давлениях, которое выполняется в этом случае, является излишне жестким, поскольку должно существовать давление, при котором атом будет «раздавлен» и перестанет существовать как отдельная структурная единица. Поэтому, на наш взгляд, физически обоснованным и естественным является использование потенциалов, принимающих конечное значение на малых расстояниях. Заметим также, что и квантово-химические расчеты дают потенциалы с конечным, хотя и большим, значением в нуле [10,11].

В этом локальном приближении система уравнений (13) - (15) принимает вид

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial \eta(\mathbf{r})}{\partial t} = & -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \eta(\mathbf{r}) + [U_0(\mathbf{r}) - \mu] \eta(\mathbf{r}) + \\
 & + U_0 \left[|\eta(\mathbf{r})|^2 \eta(\mathbf{r}) + \eta^*(\mathbf{r}) \tau(\mathbf{r}) + 2\eta(\mathbf{r}) g(\mathbf{r}) \right],
 \end{aligned} \tag{20}$$

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial \tau(\mathbf{r})}{\partial t} = & -\frac{\hbar^2}{4m} \Delta \tau(\mathbf{r}) + U(0) \eta^2(\mathbf{r}) + [U(0) + 2U_0(\mathbf{r}) - 2\mu] \tau(\mathbf{r}) - \\
 & + U_0 \left[4|\eta(\mathbf{r})|^2 \tau(\mathbf{r}) + 2\eta^2(\mathbf{r}) g(\mathbf{r}) \right],
 \end{aligned} \tag{21}$$

$$i\hbar \frac{\partial g(\mathbf{r})}{\partial t} = -U_0 [\eta^{*2}(\mathbf{r})\tau(\mathbf{r}) - \eta^2(\mathbf{r})\tau^*(\mathbf{r})]. \quad (22)$$

Здесь мы воспользовались обозначениями: $\tau_0(\mathbf{R}) \rightarrow \tau(\mathbf{r})$, $g_0(\mathbf{R}) \rightarrow g(\mathbf{r})$, $U_0 = \int U(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$. Поскольку потенциальная энергия взаимодействия атомов на малых расстояниях $U(0)$ известна плохо, то она будет рассматриваться как феноменологический подгоночный параметр. Для конкретных расчетов будем использовать простой модельный потенциал «полупрозрачной сферы»:

$$U(\mathbf{r}) = \begin{cases} u, & r < r_0, \\ 0, & r > r_0. \end{cases} \quad (23)$$

Параметр u предполагается положительным. В этом случае $U(0) = u$, $U_0 = uv$, где $v \equiv 4\pi r_0^3/3$ - «объем атома». Потенциал (23) использовался и ранее при анализе бозе-систем (см., например, [12]). В дальнейшем будем анализировать систему уравнений (20) - (22) и для оценок пользоваться потенциалом (23).

РАВНОВЕСНОЕ ПРОСТРАНСТВЕННО-ОДНОРОДНОЕ СОСТОЯНИЕ

Рассмотрим равновесное состояние пространственно-однородной системы в отсутствие внешнего поля. В этом случае величины $\eta(\mathbf{r}) \equiv \eta$, $\tau(\mathbf{r}) \equiv \tau$, $g(\mathbf{r}) \equiv g$ не зависят от координат и времени. При достаточно слабом взаимодействии при нулевой температуре большинство частиц находится в одночастичном конденсате [13,14], поэтому будем полагать равновесную нормальную корреляционную функцию $g = 0$, так что равновесная плотность числа частиц $n = |\eta|^2$. Тогда, в отсутствие внешнего поля, из (20) - (22) следуют уравнения, определяющие равновесное состояние:

$$-\mu\eta + U_0 [|\eta|^2 \eta + \eta^* \tau] = 0. \quad (24)$$

$$U(0)\eta^2 + [U(0) - 2\mu + 4U_0|\eta|^2] \tau = 0 \quad (25)$$

$$\eta^{*2} \tau - \eta^2 \tau^* = 0 \quad (26)$$

Запишем комплексные величины, выделив в них модуль и фазу: $\eta = \eta_0 e^{i\alpha}$, $\tau = \tau_0 e^{i\beta}$. Из (26) следует, что $\sin(2\alpha - \beta) = 0$. Таким образом, имеется две возможности $2\alpha - \beta = 0$ или $2\alpha - \beta = \pi$. Следует выбрать вторую возможность, поскольку только в этом случае уравнения (24), (25) имеют физически корректные решения:

$$\eta_0 [\mu - U_0(\eta_0^2 - \tau_0)] = 0, \quad (27)$$

$$U(0)\eta_0^2 - [U(0) + 4U_0\eta_0^2 - 2\mu] \tau_0 = 0. \quad (28)$$

При таком выборе фазы $\tau = -\tau_0 e^{2i\alpha}$. Исключив из этих уравнений химический потенциал, получаем

$$[U(0) - 2U_0\tau_0] \eta_0^2 - [U(0) + 2U_0\tau_0] \tau_0 = 0. \quad (29)$$

Заметим, что не существует решения системы уравнений (27), (28), когда существовал бы только одночастичный конденсат $\eta_0^2 \neq 0$, а парный конденсат отсутствовал $\tau_0 = 0$. На эту особенность бозе-систем ранее уже обращалось внимание [15]. Следует также иметь в виду, что в системах с бозе-эйнштейновским конденсатом зависимость макроскопических величин от потенциала взаимодействия является, вообще говоря, неаналитической и предельный переход по постоянной взаимодействия $U_0 \rightarrow 0$ в таких системах, как, например, и в сверхпроводниках, является некорректным. Более детально этот вопрос обсуждается в работе одного из авторов [16]. Из (29) следует связь между плотностью и парной корреляцией

$$n \equiv \eta_0^2 = \frac{1 + 2\nu\tau_0}{1 - 2\nu\tau_0} \tau_0. \quad (30)$$

Здесь использовано введенное выше для потенциала (23) соотношение $U_0 = uv$, где $v \equiv 4\pi r_0^3/3$ - «объем атома». Отсюда следует ограничение $\nu\tau_0 < 1/2$. Химический потенциал

$$\mu = 4uv \frac{\nu\tau_0^2}{1 - 2\nu\tau_0} \quad (31)$$

оказывается положительным. Зависимость величины парной корреляции от плотности определяется соотношением

$$\tau_0\nu = \frac{1}{2} \left[\sqrt{\left(n\nu + \frac{1}{2}\right)^2 + 2n\nu} - \left(n\nu + \frac{1}{2}\right) \right]. \quad (32)$$

Здесь $n\nu = \nu/\Omega$, где Ω - объем, приходящийся на одну частицу. В разреженной системе $\Omega \gg \nu$ и $n\nu \ll 1$. В этом случае $n \approx \tau_0$.

СПЕКТР ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ

Рассмотрим распространение малых возмущений в пространственно-однородной системе. Полагая

$$\eta(\mathbf{r}, t) = \eta_0 + \delta\eta(\mathbf{r}, t), \quad \tau(\mathbf{r}, t) = \tau_0 + \delta\tau(\mathbf{r}, t), \quad g(\mathbf{r}, t) = \delta g(\mathbf{r}, t), \quad (33)$$

получаем из (20) – (22) систему линеаризованных уравнений

$$i\hbar \frac{\partial \delta\eta}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \delta\eta + U_0 \left[(\eta_0^2 + \tau_0) \delta\eta + (\eta_0^2 - \tau_0) \delta\eta^* + \eta_0 \delta\tau + 2\eta_0 \delta g \right], \quad (34)$$

$$i\hbar \frac{\partial \delta\tau}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{4m} \Delta \delta\tau + \left[U(0) + 2U_0 (\eta_0^2 + \tau_0) \right] \delta\tau + \quad (35)$$

$$+ 2 \left[U(0) - 2U_0 \tau_0 \right] \eta_0 \delta\eta - 4U_0 \eta_0 \tau_0 \delta\eta^* + 2U_0 \eta_0^2 \delta g,$$

$$i\hbar \frac{\partial \delta g}{\partial t} = -U_0 \left[\eta_0^2 (\delta\tau - \delta\tau^*) + 2\eta_0 \tau_0 (\delta\eta - \delta\eta^*) \right]. \quad (36)$$

Удобно перейти от комплексных величин $\delta\eta(\mathbf{r}, t)$, $\delta\tau(\mathbf{r}, t)$ к вещественным переменным:

$$\begin{aligned} \delta\Psi(\mathbf{r}, t) &= \delta\eta(\mathbf{r}, t) + \delta\eta^*(\mathbf{r}, t), & \delta\Phi(\mathbf{r}, t) &= i \left[\delta\eta(\mathbf{r}, t) - \delta\eta^*(\mathbf{r}, t) \right], \\ \delta\Theta(\mathbf{r}, t) &= \delta\tau(\mathbf{r}, t) + \delta\tau^*(\mathbf{r}, t), & \delta\Lambda(\mathbf{r}, t) &= i \left[\delta\tau(\mathbf{r}, t) - \delta\tau^*(\mathbf{r}, t) \right]. \end{aligned} \quad (37)$$

В этих переменных система линеаризованных уравнений выглядит так:

$$\hbar \frac{\partial \delta\Psi}{\partial t} = \frac{\hbar^2}{2m} \Delta \delta\Psi - U_0 \left[2\tau_0 \delta\Phi + \eta_0 \delta\Lambda \right], \quad (38)$$

$$\hbar \frac{\partial \delta\Phi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \delta\Phi + U_0 \left[2\eta_0^2 \delta\Psi + \eta_0 \delta\Theta + 4\eta_0 \delta g \right], \quad (39)$$

$$\begin{aligned} \hbar \frac{\partial \delta\Lambda}{\partial t} &= -\frac{\hbar^2}{4m} \Delta \delta\Lambda + \left[U(0) + 2U_0 (\eta_0^2 + \tau_0) \right] \delta\Theta + \quad (40) \\ &+ 2 \left[U(0) - 4U_0 \tau_0 \right] \eta_0 \delta\Psi + 4U_0 \eta_0^2 \delta g, \end{aligned}$$

$$\hbar \frac{\partial \delta\Theta}{\partial t} = \frac{\hbar^2}{4m} \Delta \delta\Theta - \left[U(0) + 2U_0 (\eta_0^2 + \tau_0) \right] \delta\Lambda - 2U(0) \eta_0 \delta\Phi, \quad (41)$$

$$\hbar \frac{\partial \delta g}{\partial t} = U_0 \eta_0 \left[2\tau_0 \delta\Phi + \eta_0 \delta\Lambda \right]. \quad (42)$$

Полагая, что зависимость флуктуаций от координат и времени имеет вид $\sim \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)]$, из условия равенства нулю детерминанта полученной однородной системы линейных алгебраических уравнений, приходим к биквадратному уравнению, определяющему законы дисперсии возможных возбуждений:

$$(\hbar\omega)^4 - A(\hbar\omega)^2 + B = 0. \quad (43)$$

Здесь

$$A = (\hbar\omega_0)^2 + a_1 \varepsilon_k + \frac{5}{4} \varepsilon_k^2, \quad (44)$$

$$B = b_1 \varepsilon_k + b_2 \varepsilon_k^2 + b_3 \varepsilon_k^3 + \frac{\varepsilon_k^4}{4},$$

причем $\varepsilon_k = \hbar^2 k^2 / 2m$ - энергия свободной частицы. Коэффициенты в (44) имеют вид

$$\begin{aligned} a_1 &= U(0) + 4U_0 (\eta_0^2 + \tau_0), \\ b_1 &= 4U_0^2 \eta_0^2 \left[U(0) (3\eta_0^2 + 2\tau_0) + 7U_0 \tau_0^2 \right], \\ b_2 &= U^2(0) + 5U_0 U(0) (\eta_0^2 + \tau_0) + U_0^2 (6\tau_0^2 + 4\eta_0^4 + 17\tau_0 \eta_0^2), \\ b_3 &= U(0) + \frac{5}{2} U_0 (\eta_0^2 + \tau_0). \end{aligned} \quad (45)$$

Система допускает пространственно-однородные колебания с частотой ω_0 , определяемой формулой

$$(\hbar\omega_0)^2 = U^2(0) + 6U_0 U(0) (\eta_0^2 + \tau_0) + 8U_0^2 \tau_0^2. \quad (46)$$

Зависимость этой частоты от плотности, определенная с учетом соотношения (32) показана на рис. 1 (кривая 1). Биквадратное уравнение (43) имеет два решения, определяющие две ветви возбуждений:

$$(\hbar\omega_{\pm})^2 = \frac{1}{2} \left[A \pm \sqrt{A^2 - 4B} \right]. \quad (47)$$

Решение ω_{-} при малых волновых числах дает звуковую ветвь $\omega_{-}^2 = c^2 k^2$, где квадрат скорости звука определяется формулой:

$$c^2 = \frac{2U_0^2 \eta_0^2 [U(0)(3\eta_0^2 + \tau_0) + 7U_0 \tau_0^2]}{m [U^2(0) + 6U_0 U(0)(\eta_0^2 + \tau_0) + 8U_0^2 \tau_0^2]}. \quad (48)$$

Зависимость скорости звука от плотности показана на рис. 1 (кривая 2).

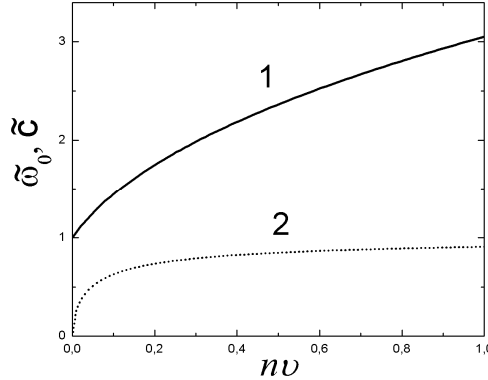


Рис. 1. Зависимости частоты однородных колебаний $\tilde{\omega}_0 = \hbar\omega_0/u$ (кривая 1) и скорости звука $\tilde{c} \equiv c/c_B$ (кривая 2) от плотности, $c_B \equiv \sqrt{u\nu n/m}$.

Решение ω_{+} отвечает ветви возбуждений с энергетической щелью. При малых k зависимость частоты от волнового числа имеет вид

$$\omega_{+}^2 = \omega_0^2 + \alpha (k^2/2m), \quad (49)$$

где

$$\alpha = \frac{[U^3(0) + 10U^2(0)U_0(\eta_0^2 + \tau_0) + 4U(0)U_0^2(8\tau_0^2 + 3\eta_0^4 + 10\eta_0^2\tau_0) + 4U_0^3\tau_0^2(\eta_0^2 + 8\tau_0)]}{U^2(0) + 6U_0 U(0)(\eta_0^2 + \tau_0) + 8U_0^2 \tau_0^2}. \quad (50)$$

Хотя, строго говоря, рассматриваемые уравнения применимы для длинноволновых возбуждений, но решения (47) дают разумные значения и при больших k :

$$\hbar\omega_{+} = \varepsilon_k, \quad \hbar\omega_{-} = \varepsilon_k/2. \quad (51)$$

Одна из ветвей в коротковолновом пределе переходит в закон дисперсии одной свободной частицы, а другая – в закон дисперсии пары связанных частиц. Ветви элементарных возбуждений в бозе-системе с учетом парных корреляций представлены на рис. 2. На этом же рисунке показан боголюбовский закон дисперсии $\hbar\omega_B = \varepsilon_k (\varepsilon_k + 2u\nu n)$. В длинноволновом пределе боголюбовский закон дисперсии стремится к звуковой ветви $\omega_{-} = ck$, а в пределе коротких волн – к ветви ω_{+} , имеющей энергетическую щель при $k \rightarrow 0$.

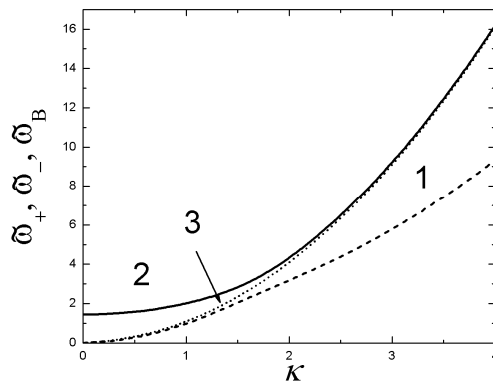


Рис. 2. Законы дисперсии малых колебаний бозе-эйнштейновского конденсата при учете парных корреляций: 1) звуковая ветвь $\tilde{\omega}_{-} = \hbar\omega_{-}/u$; 2) ветвь с энергетической щелью $\tilde{\omega}_{+} = \hbar\omega_{+}/u$; 3) боголюбовский закон дисперсии

$$\tilde{\omega}_B = \hbar\omega_B/u, \quad \kappa \equiv \hbar k / \sqrt{2mU(0)}. \text{ Расчет выполнен при } \nu = 0,1.$$

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе показано, что в бозе- системе для квазисредних от произведений полевых операторов может быть найдена цепочка уравнений, аналогичная цепочке Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона в теории классических газов. При учете только квазисредних от одного полевого оператора и произведений двух операторов, получена замкнутая система динамических уравнений для бозе-эйнштейновского конденсата при нулевой температуре, учитывающая одночастичный конденсат и парные корреляции. Полученная система дифференциальных уравнений (20) - (22), описывает динамику бозе-эйнштейновского конденсата и обобщает уравнение Гросса-Питаевского с учетом короткодействующих парных корреляций. Исследован спектр малых колебаний в пространственно-однородной однородной системе. Показано, что имеется две ветви элементарных возбуждений: одна со звуковым законом дисперсии в пределе длинных волн, а вторая, имеет в этом пределе энергетическую щель.

Следует отметить, что вопрос о возможности существования в бозе-системах возбуждений с энергетической щелью имеет давнюю историю и обсуждался во многих работах (см., например, [17-22]). На возможность существования в дополнение к фоновой ветви спектра другой ветви, имеющей энергетическую щель, на качественном уровне обращено внимание в книге [14, с. 322].

В экспериментальной работе [23] обнаружено поглощение СВЧ излучения в сверхтекучем гелии на частоте около 180 ГГц. В работе [24] было высказано предположение, что это поглощение обязано существованию в сверхтекучем гелии возбуждений с энергетической щелью. Полученный в данной работе результат, демонстрирующий существование двух ветвей элементарных возбуждений, одна из которых звуковая, а другая имеет энергетическую щель, можно рассматривать как подтверждение качественных аргументов в пользу модификации энергетического спектра в сверхтекучем гелии, которые были сформулированы в работе [24].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Gross E.P. Structure of a quantized vortex in boson system // *Nuovo Cimento*. – 1961. – Vol. 20 – P. 454-477.
2. Pitaevskii L. Vortex lines in an imperfect Bose gas // *Sov. Phys. JETP*. – 1961 – Vol. 13. – P. 451-454.
3. Pitaevskii L., Stringari S. Bose-Einstein condensation. – Oxford University Press USA, 2003.
4. Pethick C.H., Smith H. Bose-Einstein condensation in dilute gases. – Cambridge University Press, 2001.
5. Poluektov Yu.M. The polarization properties of an atomic gas in a coherent state // *Low Temp. Phys.* – 2011 – Vol. 37. – No.12. – P. 986; [FNT. – 2011 – Vol. 37. – No.12. – P. 1239-1257].
6. Bogolyubov N.N. Problems of dynamic theory in statistical physics / Selected works in three volumes. – Kiev: Naukova Dumka. – 1970. – Vol. 2. – P. 522.
7. Peletminskii A.S., Peletminskii S.V., Poluektov Yu.M. Role of single-particle and pair condensates in Bose systems with arbitrary intensity of interaction // *Condensed Matter Physics*, 2013, vol. 16, No. 1, 13603. [arXiv:1303.5539](https://arxiv.org/abs/1303.5539) [cond-mat.stat-mech].
8. Bogolyubov N.N. Quasiaverages in problems of statistical mechanics / Selected works in three volumes. – Kiev: Naukova Dumka. – 1971. – Vol. 3. – P. 488.
9. Poluektov Yu.M. On self-consistent determination of the quasi-average in statistical physics // *Low Temp. Phys.* – 1997 – Vol. 23. – No.9. – P. 685; [FNT. – 1997 – Vol. 23. – No.9. – P. 915-922].
10. Aziz R.A., Slaman. M.J. An examination of ab initio result for the helium potential energy curve // *J. Chem. Phys.* – 1991 – Vol. 94. – P. 8047.
11. Anderson J.B., Traynor C.A., Boghosian B.M. An exact quantum Monte Carlo calculation of the helium-helium intermolecular potential // *J. Chem. Phys.* – 1993 – Vol. 99 – P. 345.
12. Brueckner K. A. Theory of nuclear structure. The many body problem. – London: Methuen a.o., 1959.
13. Bogolyubov N.N. On the theory of superfluidity // *J. Phys. USSR* – 1946 – Vol. 11 – P. 23-32.; [Izv. AN SSSR, Ser. Fiz – 1947 – Vol. 11. – No. 1. – P. 77-90.]
14. Bogolyubov N.N., Bogolyubov N.N. (Jr). Introduction to quantum statistical mechanics. – Moscow: Nauka, 1984. – 384p.
15. Poluektov Yu.M. Pro kvantovopol'ovyi opys bagatochastynkovykh Boze-system zi spontanno porushenyi symetriiamy [About quantum field description of many particle Bose - systems with spontaneously broken symmetry] // *UFZh*. – 2007. – Vol. 52. – No.6. – P. 578-594 [arXiv.org cond-mat arXiv: 1306.2103]. (in Ukrainian)
16. Poluektov Yu.M. A simple model of Bose-Einstein condensation of interacting particles // *JLTP*. – 2017 – Vol. 186. – No.5-6. – P. 347-362.
17. Bijl A. The lowest wave function of the symmetrical many particles system // *Physica* – 1940 – Vol. 7 – P.869-886.
18. Girardeau M., Arnowitt R. Theory of many-boson system: pair theory // *Phys. Rev.* – 1959. – Vol.113. – No.3. – P. 755-761.
19. Wentzel G. Thermodynamically equivalent Hamiltonian for some many-body problems // *Phys. Rev.* – 1960. – Vol.120. – No. 5. – P. 1572-1575.
20. Luban M. Statistical mechanics of a nonideal boson gas: pair Hamiltonian model // *Phys. Rev.* – 1962. – Vol.128 – No.2. – P. 965-987.
21. Tolmachev V.V. Temperature elementary excitations in a non-ideal Bose-Einstein system // *DAN SSSR* – 1960 – Vol.135 – No. 4. – P. 825-828. (in Russian)
22. Poluektov Yu.M. Self-consistent field model for spatially inhomogeneous Bose systems // *Low Temperature Physics*. – 2002. – Vol. 28. – No.6. – P. 429-441; [FNT – 2002. – Vol. 28. – No.6. – P. 604-620].
23. Rybalko A., Rubets S., Rudavskii E., Tikhii V., Tarapov S., Golovashchenko R., Derkach V. Resonance absorption of microwaves in HeII: Evidence for roton emission // *Phys. Rev. B*. – 2007. – Vol.76. – P.140503.
24. Poluektov Yu.M. Absorption of electromagnetic field energy by the superfluid system of atoms with a dipole moment // *Low Temperature Physics*. – 2014. – Vol. 40. – No.5. – P. 389; [FNT – 2014. – Vol. 40. – No.5 – P. 503-512].

PACS: 61.10 – i; 81.20. – n

CLINOPTILOLITE WITH CESIUM IMMOBILIZATION TO POTASSIUM MAGNESIUM PHOSPHATE MATRIX

S.Yu. Sayenko, V.A. Shkuropatenko, N.P. Dikiy, R.V. Tarasov, K.A. Ulybkina,
O.Y. Surkov, L.M. Litvinenko

National Science Center «Kharkov Institute of Physics and Technology»

1, Academicheskaya st., Kharkov 61108, Ukraine

e-mail: prudyvusk@kipt.kharkov.ua

Received March 3, 2017

The possibility of potassium magnesium phosphate (PMP) matrix application for immobilization of clinoptilolite with simulator of radioactive cesium isotopes was investigated. X-ray phase analysis of the natural clinoptilolite sample has shown that it includes two main phases of clinoptilolite $(\text{Na,K})_4\text{CaAl}_6\text{Si}_3\text{O}_{72}\cdot 24\text{H}_2\text{O}$, and mordenite $(\text{Na}_2\text{Ca, K}_2)_4\text{Al}_8\text{Si}_4\text{O}_{96}\cdot 28\text{H}_2\text{O}$. In addition, impurities of SiO_2 , Fe_2O_3 and TiO_2 phases are observed. To saturate clinoptilolite with cesium, 0.5 M solution of cesium chloride was used. A chemical analysis of clinoptilolite after saturation with cesium has demonstrated that the content of cesium in clinoptilolite was about 2 wt.%. After the introduction of clinoptilolite with cesium in the PMP matrix, the obtained material was identified as potassium-magnesium phosphate with the presence of clinoptilolite, mordenite, TiO_2 and unreacted MgO phases. The results of the electron microscopy analysis have shown that cesium was dislocated between PMP matrix and clinoptilolite, incorporated into the PMP matrix. Normalized leaching rate of cesium from PMP matrix with 25wt.% clinoptilolite was about $3.2\cdot 10^{-4}$ g / cm^2 per day after 7 days testing.

KEY WORDS: clinoptilolite, potassium magnesium phosphate matrix, cesium chloride, X-ray analysis, corrosion resistance.

ІММОБІЛІЗАЦІЯ КЛІНОПТИЛОЛІТУ З ЦЕЗІЄМ У КАЛІЙ-МАГНІЙ ФОСФАТНУ МАТРИЦЮ

С.Ю. Саєнко, В.А. Шкурпатенко, М.П. Дикий, Р.В. Тарасов, К.А. Ульбкіна, О.Є. Сурков, Л.М. Литвиненко

Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»

вул. Академічна 1, Харків, Україна, 61108

Досліджено можливість використання калій - магній фосфатної матриці (КМФ) для іммобілізації кліноптилоліта, що містить імітатор радіоактивних ізотопів цезію. Рентгенофазовий аналіз зразка природного кліноптилоліта показав, що в його склад входять дві основні фази кліноптилоліт $(\text{Na,K})_4\text{CaAl}_6\text{Si}_3\text{O}_{72}\cdot 24\text{H}_2\text{O}$ і морденіт $(\text{Na}_2\text{Ca, K}_2)_4\text{Al}_8\text{Si}_4\text{O}_{96}\cdot 28\text{H}_2\text{O}$, а також спостерігаються домішки фаз SiO_2 , Fe_2O_3 і TiO_2 . Для насичення кліноптилоліта цезієм використовували 0,5 М розчин хлориду цезію. Проведений хімічний аналіз кліноптилоліта після насичення цезієм показав, що вміст цезію в кліноптилоліті становить ~ 12 мас.%. Після введення кліноптилоліта з цезієм в КМФ матрицю отриманий матеріал ідентифікується як калій-магнієвий фосфат з присутністю фаз кліноптилоліта, морденіта, TiO_2 і MgO , який не прореагував. Результати електронно-мікроскопічних досліджень показали, що цезій розподілився між КМФ матрицею і кліноптилолітом, який інкорпорований в КМФ матрицю. Нормалізована швидкість вилигування цезію із зразків КМФ матриці з 25 ваг.% кліноптилоліта становить $3,2\cdot 10^{-4}$ г / см^2 ·доб. на 7-у добу випробувань.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: кліноптилоліт, калій - магній фосфатна матриця, хлорид цезію, рентгенофазовий аналіз, корозійна стійкість.

ИММОБИЛИЗАЦИЯ КЛИНОПТИЛОЛИТА С ЦЕЗИЕМ В КАЛИЙ-МАГНИЙ ФОСФАТНУЮ МАТРИЦЮ

С.Ю. Саєнко, В.А. Шкурпатенко, М.П. Дикий, Р.В. Тарасов, Е.А. Ульбкіна, А.Е. Сурков, Л.М. Литвиненко

Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт»

ул. Академическая 1, Харьков, Украина, 61108

Исследована возможность использования калий- магний фосфатной матрицы (КМФ) для иммобилизации клиноптилолита, содержащего имитатор радиоактивных изотопов цезия. Рентгенофазовый анализ образца природного клиноптилолита показал, что в его состав входит две основные фазы клиноптилолит $(\text{Na,K})_4\text{CaAl}_6\text{Si}_3\text{O}_{72}\cdot 24\text{H}_2\text{O}$ и морденит $(\text{Na}_2\text{Ca,K}_2)_4\text{Al}_8\text{Si}_4\text{O}_{96}\cdot 28\text{H}_2\text{O}$, а также наблюдаются примеси фаз SiO_2 , Fe_2O_3 и TiO_2 . Для насыщения клиноптилолита цезием использовали 0,5 М раствор хлорида цезия. Проведенный химический анализ клиноптилолита после насыщения цезием показал, что содержание цезия в клиноптилолите составляет ~ 12 вес.%. После введения клиноптилолита с цезием в КМФ матрицу полученный материал идентифицируется как калий-магний фосфат с присутствием фаз клиноптилолита, морденита, TiO_2 и не прореагировавшего MgO . Результаты электронно-микроскопических исследований показали, что цезий распределился между КМФ матрицей и клиноптилолитом, который инкорпорован в КМФ матрицу. Нормализованная скорость выщелачивания цезия из образцов КМФ матрицы с 25 вес.% клиноптилолита составляет $3,2\cdot 10^{-4}$ г/ см^2 ·сутки на 7-ые сутки испытаний.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: клиноптилолит, калий – магний фосфатная матрица, хлорид цезия, рентгенофазовый анализ, коррозионная стойкость.

Одним из основных методов извлечения радионуклидов из жидких радиоактивных отходов, которые образуются в результате работы АЭС, является сорбционный метод. В качестве неорганических сорбентов, наряду с другими, используют природные и синтетические цеолиты. Цеолиты представляют собой алюмосиликаты, в которых каждый атом Si и Al окружен четырьмя атомами кислорода, образуя тетраэдры,

соединяющиеся друг с другом вершинами и формирующие упорядоченную структуру с полостями и каналами. Природные цеолиты значительно дешевле, чем синтетические и обладают достаточно высокой ионообменной емкостью и механической прочностью.

Природные цеолиты широко применяются в атомной энергетике в качестве сорбентов для очистки вод бассейнов-охладителей отработанного ядерного топлива, дезактивации оборудования ядерных объектов. При ликвидации последствий аварии на ЧАЭС использовались цеолиты [1].

В настоящее время известно более 40 структурных видов природных цеолитов, наиболее распространенными из которых являются клиноптилолит, гейландит, морденит, шабазит, анальцит и др. Клиноптилолит занимает особое место среди природных цеолитов, благодаря его высокой радиационной и термической стойкости. Клиноптилолит является высокоселективным сорбентом по отношению к крупным ионам, что делает его предпочтительным при использовании в качестве сорбента радиоактивных изотопов щелочных и щелочноземельных элементов с большим ионным радиусом [2].

Ионообменный характер сорбции накладывает свою специфику на свойства различных сорбентов, в том числе и клиноптилолита. Обратимость ионообменной реакции приводит к созданию условий для вымывания радионуклидов при хранении отработанных сорбентов [3]. Поэтому для надежной изоляции отработанных сорбентов необходимо обеспечить их включение в матричный материал, что будет гарантировать локализацию радионуклидов в процессе хранения и дальнейшего захоронения.

В работе J.M. Juoi, M.I. Ojovan, W.E. Lee [4] проведены исследования возможности использования боросиликатного стекла для иммобилизации клиноптилолита, содержащего цезий. Создание матрицы из боросиликатного стекла достигалось смешиванием порошков боросиликатного стекла и цезийсодержащего клиноптилолита в разных объемных отношениях от 1:1 до 1:10 (от 37 до 88 вес.%) с последующим формованием таблеток и их спеканием при 750 °С, 2 часа. Низкая скорость выщелачивания цезия сохраняется при загрузке клиноптилолитом до 73% вес. Однако при этом необходимо учитывать, что процесс остекловывания является энергоемким и дорогостоящим процессом при реализации в больших масштабах. Кроме того, остекловывание подразумевает использование высоких температур, при которых происходит деструкция структуры клиноптилолита, и повышается вероятность улетучивания цезия. Поэтому, существует необходимость в получении матриц для иммобилизации отработанных сорбентов при низких температурах.

В настоящее время калий-магний фосфатная керамика $KMgPO_4 \cdot 6H_2O$ предложен для иммобилизации твердых радиоактивных отходов, жидких радиоактивных отходов и шламов [5-8]. Калий-магний фосфатную керамику, которая имеет комнатную температуру синтеза и высокие коррозионные и радиационные свойства, по-видимому, целесообразно использовать для иммобилизации отработанных сорбентов.

Целью данной работы являлось исследование возможности использования калий-магний фосфатной матрицы для иммобилизации клиноптилолита, содержащего имитатор радиоактивных изотопов цезия.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Для синтеза калий-магниевого фосфата (КМФ) использовали следующие реактивы: оксид магния MgO (марка ч.), термообработанный при температуре 1300 °С в течение 1 часа, дигидрофосфат калия KH_2PO_4 (марка ч.), дистиллированная вода (рН = 5,5). Исследование возможностей КМФ матрицы для кондиционирования отработанных сорбентов проводили с использованием природного клиноптилолита (Сокирницкое месторождение). Термообработку КМФ образцов осуществляли на воздухе в высокотемпературной электропечи Nabertherm P310 (Германия). Для измельчения порошков использовали планетарную мельницу «Pulverisette 6» (Германия). Фазовый состав материалов до и после термообработок исследовали методом рентгеноструктурного анализа (ДРОН - 1,5, Cu K_{α} с никелевым фильтром для ослабления K_{β} составляющей характеристического излучения). Для идентификации фаз использовалась база дифракционных данных ASTM. Для определения процессов, проходивших при нагревании КМФ порошков, проводили дифференциально-термический анализ (ДТА) на термоанализаторе SDT Q600 V20.9 Build 20 (США) в интервале температур 20-1000 °С, скорость нагрева 10 °С/мин. Исследование микроструктуры образцов проводили на растровом (сканирующем) электронном микроскопе JSM-7001F (JEOL, Япония) оборудованном термополевой электронной пушкой. Анализ состава образцов проведен методом энергодисперсионного рентгеновского микроанализа при помощи анализатора INCA Penta FETx3 (Oxford Instruments, Великобритания). Элементный анализ твердых образцов определяли с помощью лазерного масс-спектрометра высокого разрешения ЭМАЛ-2 с двойной фокусировкой. Методом атомно-абсорбционной спектроскопии (спектрометр Ace 3000 фирмы Thermo Scientific) определяли концентрацию цезия в выщелате.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Природный клиноптилолит Сокирницкого месторождения Закарпатской области с цезием использовали в качестве имитатора отработанного сорбента. Рентгенофазовый анализ (РФА) образца природного клиноптилолита показал, что в его состав входит две основные фазы клиноптилолита $(Na,K)_4CaAl_6Si_3O_{72} \cdot 24H_2O$ (ASTM № 24-0319) и морденита $(Na_2Ca,K_2)_4Al_8Si_{40}O_{96} \cdot 28H_2O$ (RRUFF R070524), а также наблюдаются примеси фаз SiO_2 , Fe_2O_3 и TiO_2 . (рис. 1).

Для насыщения клиноптилолита цезием использовали 0,5 М раствор хлорида цезия. Известно, что степень измельчения клиноптилолита значительно влияет на его сорбционные процессы. Увеличение размера гранул клиноптилолита ведет к резкому снижению сорбционных свойств по отношению к цезию, несмотря на высокую селективность к цезию. Поэтому клиноптилолит предварительно измельчали в ступке и просеивали через сито с размером 100 мкм. Далее, для осуществления насыщения, измельченный клиноптилолит смешивали с водным раствором хлорида цезия и выдерживали в течение недели при комнатной температуре. Ранее было показано, что насыщение природного цеолита для ^{137}Cs достигает максимальной величины при pH равном 10 [9]. Для повышения pH раствора хлорида цезия до 10 добавляли NaOH. Насыщенный цезием клиноптилолит после извлечения из раствора сушили при температуре 110 °С в течение 24 часов. Химический состав клиноптилолита после насыщения цезием определяли методом лазерной масс-спектропии на установке ЭМАЛ-2. Как видно из таблицы 1, содержание цезия в клиноптилолите составляет ~12 вес.% и находится в области значений насыщения клиноптилолита цезием 3,32 - 39,87 вес.% [4]. Приведенный состав остальных компонентов свидетельствуют о том, что они принадлежат в основном клиноптилолиту и его примесям, что подтверждается данными РФА (рис. 2). Представленные результаты РФА клиноптилолита с цезием показывают, что фазовый состав не изменился, кроме появления фазы хлорида цезия (ASTM № 05-0607), расположение дифракционных максимумов которого практически совпадает с рефлексами отражений клиноптилолита.

Таблица 1

Химический состав клиноптилолита с цезием

Состав	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	H ₂ O	CsCl
% вес.	0,23	0,77	9,54	57,1	2,45	2,2	0,2	2,1	10,0	15,1

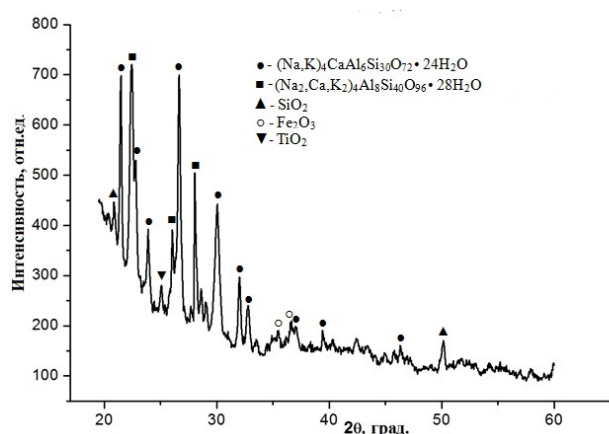


Рис. 1. РФА природного клиноптилолита

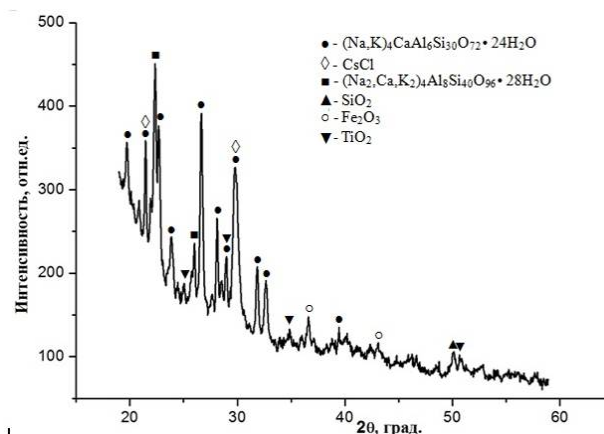


Рис. 2. РФА клиноптилолита с CsCl

На рис. 3 представлены ДТА/ТГ кривые образца клиноптилолита в интервале температур 20-1000 °С. Вначале на кривой ТГ до температуры 650 °С наблюдается монотонное уменьшение массы образца, а затем при повышении температуры масса практически не изменяется. Положение эндотермического пика (от 25 до 300 °С) на кривой ДТА соответствует потере воды. В интервале температур 300 – 1000 °С эндотермических и экзотермических пиков на кривой ДТА не наблюдается.

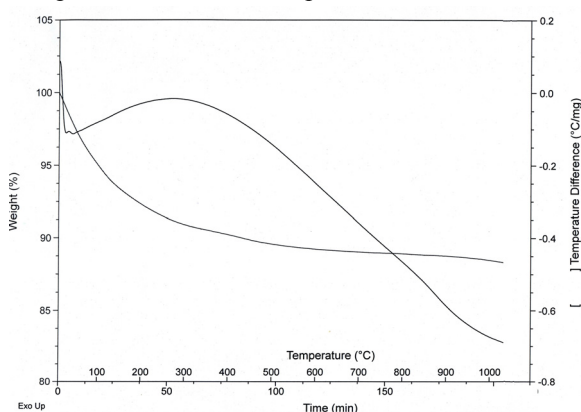


Рис. 3. ДТА/ТГ клиноптилолита

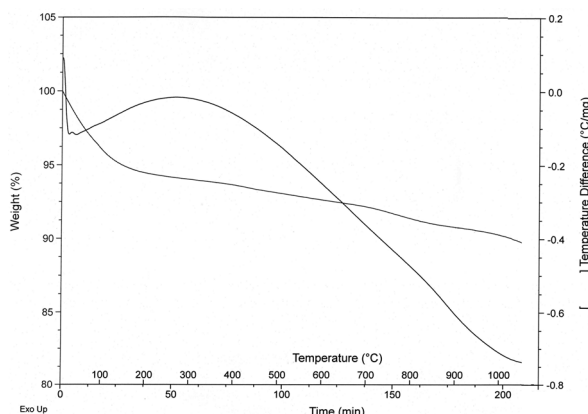


Рис. 4. ДТА/ТГ клиноптилолита с CsCl

Сравнение ДТА/ТГ кривых клиноптилолита с цезием (рис. 4) и без него (рис. 3) показало более медленную потерю массы клиноптилолита без цезия. Особенно это касается интервала температур 648 – 863 °С, который отвечает температурному интервалу полного испарения хлорида цезия (рис. 5).

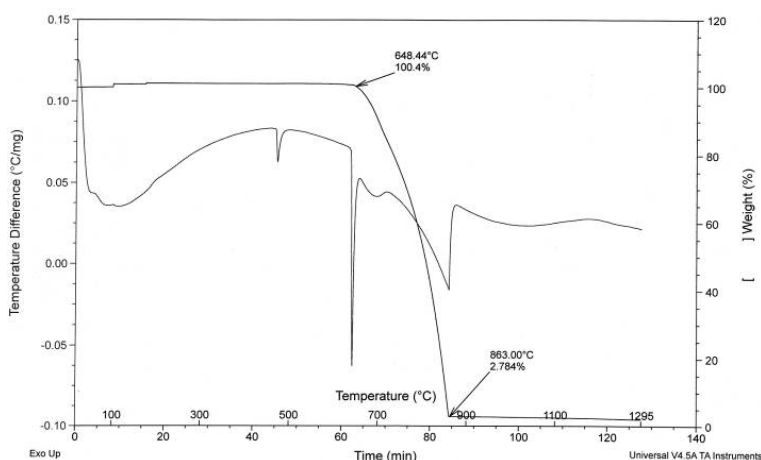


Рис. 5. ДТА/ТГ анализ CsCl

Большая потеря массы образца клиноптилолита с цезием в этом интервале температур вызвана, по-видимому, выходом цезия из каналов и полостей структуры клиноптилолита. Перед введением клиноптилолита с цезием в КМФ матрицу было проведено измельчения в планетарной мельнице в течение 4 часов при 300 об./мин. Рассмотрение дифрактограммы измельченного клиноптилолита с цезием показало наличие тенденции к уменьшению интенсивности и количества линий морденита, вследствие того, что он испытывает более значительные разрушения во время измельчения (рис. 6). Известно,

что прочность морденита меньше по сравнению с прочностью клиноптилолита.

Для получения калий магний фосфатной матрицы с 25 вес.% клиноптилолита, насыщенного цезием, раствор дигидрофосфата калия добавляли в перемешанную смесь сухих порошков оксида магния и клиноптилолита с цезием. На рис. 7 представлена блок - схема лабораторного технологического процесса изготовления калий магний фосфатной матрицы с включением в неё клиноптилолита с цезием.

Дифрактограмма образца $KMgPO_4 \cdot 6H_2O + 25$ вес.% клиноптилолита с Cs представлена на рис. 8. Из рассмотрения дифрактограммы следует, что полученный материал идентифицируется как калий магний фосфат (ASTM № 35-0812) с присутствием фаз клиноптилолита, морденита, TiO_2 и не прореагировавшего MgO .

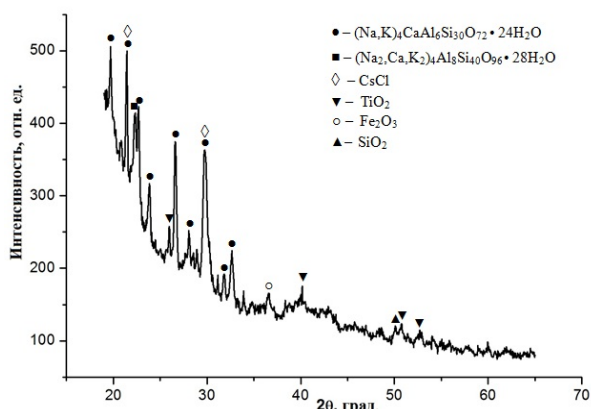


Рис. 6. РФА клиноптилолита с CsCl после измельчения 4 часа при 300 об./мин

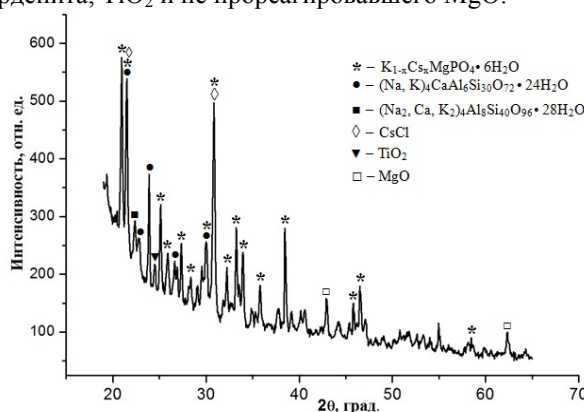


Рис. 8. РФА композиции $KMgPO_4 \cdot 6H_2O + 25$ вес.% клиноптилолита с CsCl

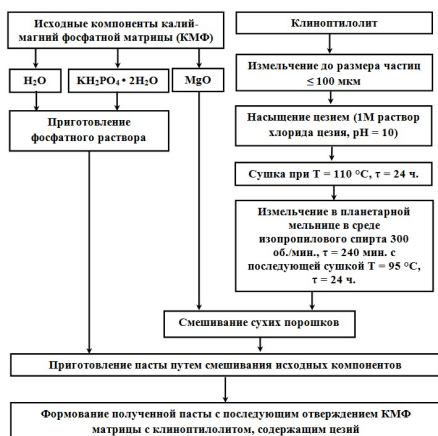


Рис. 7. Блок – схема технологического процесса изготовления калий магний фосфатной матрицы с включением в неё 25 вес.% клиноптилолита, насыщенного цезия

Проведенное исследование микроструктуры и элементного состава образцов калий магний фосфатной матрицы + 25 вес.% клиноптилолита с цезием показывает, что в различных участках образца наблюдается неоднородность структуры от волокнистых образований до зерен неправильной формы. Волокнистая структура (рис. 9а) по результатам элементного анализа, в основном, представлена калий магний фосфатной матрицей и незначительным количеством элементов клиноптилолита и цезия (~ 3,5 вес.%) (табл. 2). Длина волокон составляет от 10 мкм до 20 мкм, сечение волокон ~ 3 мкм. В свою очередь зеренная структура (рис. 9б) состоит из элементов как калий магний фосфата, так и клиноптилолита и содержит большее количество цезия (~ 13 вес.%) (табл. 3). Это означает, что вероятно, часть цезия вошла в структуру калий магний фосфата, а другая часть осталась в клиноптилолите, который внедрен в фосфатную матрицу.

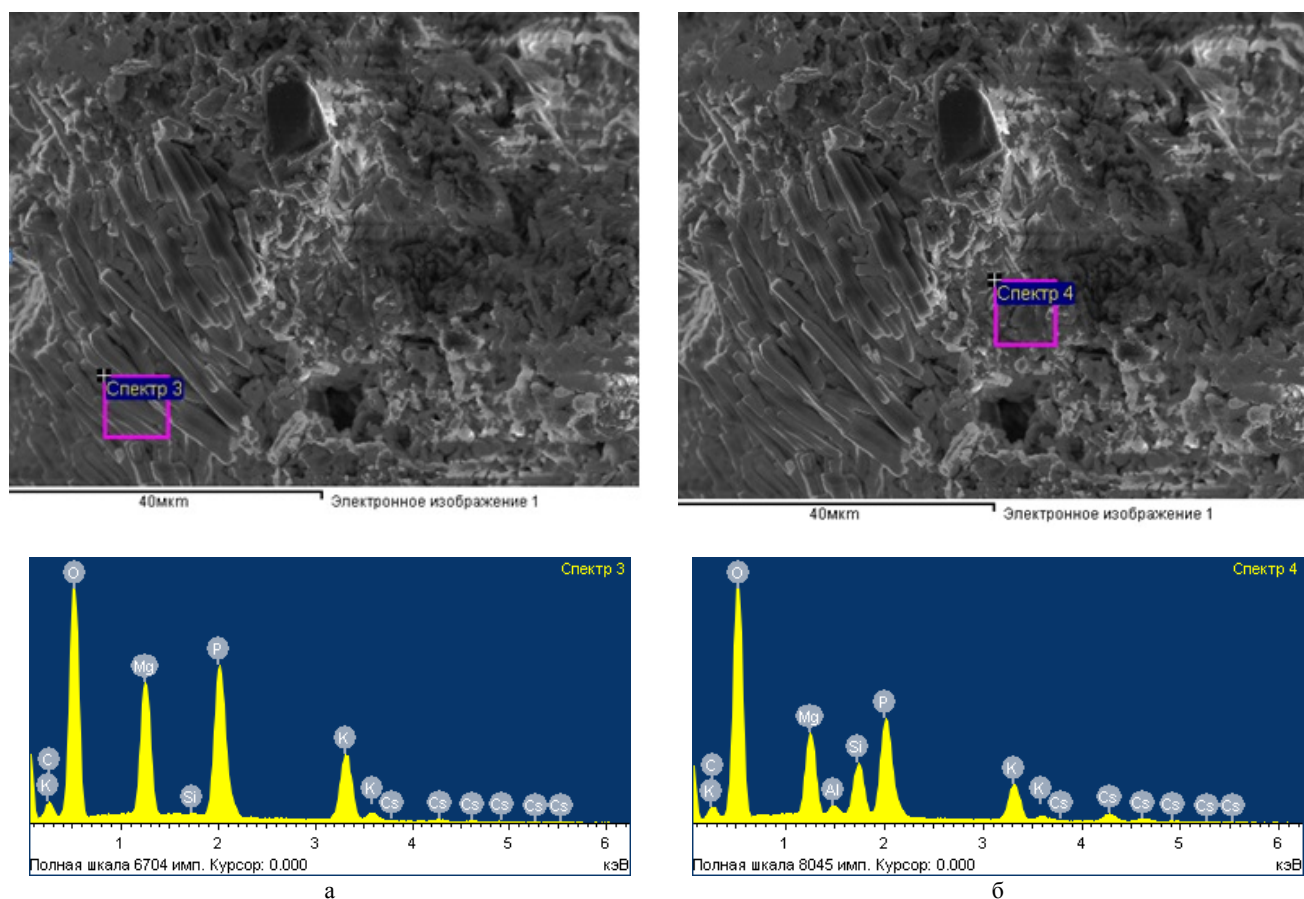


Рис. 9. СЭМ $KMgPO_4 \cdot 6H_2O$ + 25 вес.% клиноптилолита с Cs

Таблица 2

Элементный состав волокнистой структуры КМФ + 25 вес.% клиноптилолита с цезием (спектр 3)

Элемент	O	Mg	Si	P	K	Cs	Итого
Вес. %	46,99	12,24	0,39	19,44	17,63	3,31	100,00

Таблица 3

Элементный состав зеренной структуры КМФ + 25 вес.% клиноптилолита с цезием (спектр 4)

Элемент	O	Mg	Al	Si	P	K	Cs	Итого
Вес. %	45,91	8,80	0,96	6,58	14,46	10,67	12,62	100,00

На рис. 10 представлено СЭМ изображение участка образца КМФ матрица + 25 вес.% клиноптилолита с цезием и карты распределения основных элементов. Хорошо видна область, состоящая из не прореагировавших полностью частиц оксида магния (рис. 9а). Сравнение карт распределения цезия и элементов, входящих в состав КМФ и клиноптилолита, также подтверждает вывод о том, что большая часть цезия находится в каналах клиноптилолита. Остальная часть цезия присутствует в КМФ матрице, что свидетельствует о частичном связывании цезия КМФ матрицей.

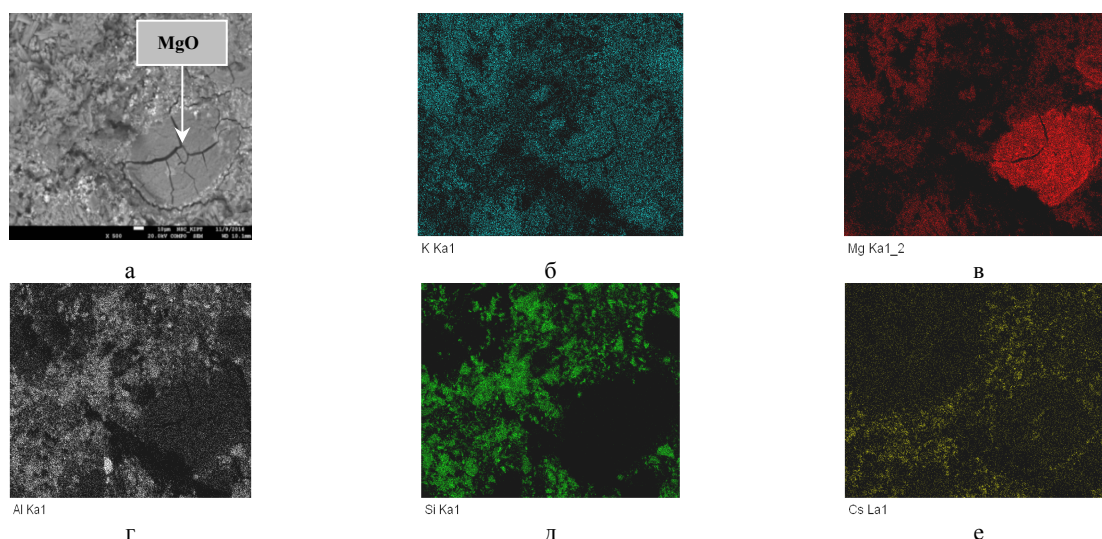


Рис. 10. Карты распределения элементов КМФ матрицы + 25 % клиноптилолита с цезием

Применение различных материалов в качестве матричных или иммобилизационных требует оценки их коррозионных свойств в различных условиях и средах. Для сравнения и оценки этих свойств разработаны и нашли широкое применение различные методы испытаний. Наибольшее признание у специалистов получил тест США MCC-1 (Materials Characterization Center Static Leach Test, USA). Тест на выщелачивание проводили в дистиллированной воде согласно требованиям теста MCC-1, который является статическим тестом для монолитных образцов с известной геометрической поверхностью, при температуре 90 °С в течение 7 суток. Образцы КМФ матрицы + 25 вес.% клиноптилолита с цезием помещали в водную среду в тефлоновых контейнерах с плотно закрывающимися крышками. Концентрацию цезия в выщелате определяли методом атомно-абсорбционной спектрометрии с помощью прибора Ace 3000 фирмы Thermo Scientific. Концентрация цезия в исходном образце до выщелачивания была определена расчетным путем на основе данных о содержании хлорида цезия в клиноптилолите. Нормализованная скорость выщелачивания рассчитана, используя следующее уравнение:

$$v = \frac{A_n^i}{f_i \cdot SA \cdot t_n}, \quad (1)$$

где v – скорость выщелачивания отдельных элементов (г/см²·сутки), A_n^i – концентрация i -го элемента (г/л) в выщелате за n -ый интервал времени, f_i – массовая концентрация i -го элемента в исходном образце (г/г), SA – площадь открытой геометрической поверхности образца (см²), t_n – продолжительность n -го периода выщелачивания (сутки).

Значение нормализованной скорости выщелачивания цезия из образца КМФ матрица + 25 вес.% клиноптилолита с цезием составляет 9,3·10⁻⁴ и 3,2·10⁻⁴ г/см²·сутки на 3-и и 7-ые сутки испытаний, соответственно. Близкие значения нормализованной скорости выщелачивания цезия (~10⁻³ – 10⁻⁴ г/см²·сутки) были получены для низко температурной цементно-бentonитовой матрицы с загрузкой 290-350 кг/м³ ионообменной смолы [10]. В работе [4] нормализованная скорость выщелачивания цезия из термообработанных при 750°С образцов стекла с различным объемным содержанием клиноптилолита с цезием (1:1 – 1:10) находится в диапазоне 3,37·10⁻³ – 2,84·10⁻⁷ соответственно.

В данной работе проведены исследования по включению 25 вес. % клиноптилолита с цезием в калий магний фосфатную матрицу, изучен фазовый состав, микроструктура и скорость выщелачивания цезия из полученного материала. Дальнейшая работа будет направлена на увеличение загрузки КМФ матрицы клиноптилолитом с цезием и проведению исследований влияния загрузки на микроструктуру и коррозионную стойкость полученных материалов.

ВЫВОДЫ

1. Показано, что фазовый состав образцов природного клиноптилолита после насыщения в растворе хлорида цезия и сушки представлен клиноптилолитом, морденитом, примесными фазами SiO₂, Fe₂O₃ и TiO₂, а также хлоридом цезия. Содержание хлорида цезия составляет 15,1 вес. %.
2. Интенсивное измельчение природного клиноптилолита с цезием в планетарной мельнице со скоростью 300 об./мин. в течение 4 часов приводит к уменьшению количества морденита.
3. Проведено исследование по включению клиноптилолита, насыщенного цезием, в калий магний фосфатную матрицу. Методом СЭМ показано, что цезий распределился между КМФ матрицей и

клиноптилолитом, который инкорпорируется в КМФ матрицу.

4. Проведенные коррозионные испытания методом выщелачивания материалов образцов КМФ матрица + 25 вес.% клиноптилолита с цезием. Нормализованная скорость выщелачивания цезия на 7-ые сутки испытаний равна $3,2 \cdot 10^{-4}$ г/см²сутки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Rodriguez-Trejo R., Bosch P., Bulbulian S. Combustion treatment of Co²⁺ and Cs⁺ exchanged zeolites // *Journal of Nuclear Materials*. – 2006. – Vol. 354. – P. 110–122.
2. Breck D. Tseolitovyye molekulyarnyye sita. // М.: Mir. - 1976. - 139p. (in Russian)
3. A.S. Nikiforov, V.V. Kulinichenko, M.I. Zhikharev. Obezvrezhivaniye zhidkikh radioaktivnykh otkhodov [Neutralization of liquid radioactive waste]. - М: Energoatomizdat, 1985. (in Russian)
4. Juoi J.M., Ojovan M.I., Lee W.E. Microstructure and leaching durability of glass composite waste forms for spent clinoptilolite immobilization // *Journal of nuclear materials*. – 2008. – Vol. 372. – P. 358–366.
5. Arun S. Wagh. Chemically Bonded Phosphate Ceramics / *Twenty-First Century Materials with Diverse Applications*, Second Edition, Elsevier, 2016. – 400 p.
6. Vinokurov S.E., Kulyako Y.M., Slyuntchev O.M., Rovny S.I., Myasoedov B.F. Low-temperature immobilization of actinides and other components of high-level waste in magnesium potassium phosphate matrices // *Journal of Nuclear Materials*. – 2009. – Vol. 385. – No. 1. – P. 189–192.
7. Singh D., Mandalika V.R., Parulekar S.J., Wagh A.S. Magnesium potassium phosphate ceramic for ⁹⁹Tc immobilization // *Journal of Nuclear Materials*. – 2006. – Vol. 348. – P. 272–282.
8. Wagh Arun. S., Sayenko S.Y., Shkuropatenko V.A., Tarasov R.V., Dykiy M.P., Svitlychniy Y.O., Virych V.D., Ulybkina E.A. Cesium immobilization in struvite structures // *Journal of Hazardous Materials*. – 2016. – Vol. 302. – P. 241–249.
9. Osmanlioglu A.E. Treatment of radioactive liquid waste by sorption on natural zeolite in Turkey // *Journal of Hazardous Materials*. – 2006. – Vol. B137. – P. 332–335.
10. Plecas I., Pavlovic R., Pavlovic S. Leaching behavior of ⁶⁰Co and ¹³⁷Cs from spent ion exchange resins in cement–bentonite clay matrix // *Journal of Nuclear Materials*. – 2004. – Vol. 327. – Issues 2–3. – P. 171–174.

PACS: 61.41.+e, 62.20.fg

LOW TEMPERATURE DEFORMATION AND STRENGTH OF POLYIMIDE FILMS DUE TO THICKNESS AND DEFORMATION SPEED

V.A. Lototskaya¹, L.F. Yakovenko¹, E.N. Aleksenko¹, V.V. Abraimov¹, Wen Zhu Shao²

¹*B. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering of NAS of Ukraine
Nauky av., 47, Kharkov, 61103, Ukraine*

e-mail: lototskaya@ilt.kharkov.ua

²*Harbin Institute of Technology
Harbin, the People's Republic of China*

Received April 20, 2017

In work mechanical properties of polyimide films analogue kapton H (manufactures of the People's Republic of China) with different thickness in the temperature interval 77-293 K and deformation speed interval 10^{-4} - 10^{-3} s⁻¹ are carried out. It is established, that the films are in a forced elastic state at both temperatures of deformation. Contributions to total deformation such as elastic, high elastic (reversible at temperature of test and delay) and irreversible components are determined. It is detected, that relaxation processes which are connected with the contribution of elastic delayed deformation and are accompanied with reduction of their length, take course at exposure at a room temperature of samples after destruction or preliminary deformation. Full removal high elastic delayed deformation occurs after heat treatment at 623 K. Sensitivity of a limit of forced elasticity s_b and the contribution of elastic deformation which is reversible at test temperature to deformation speed are established. Influence of the scale factor (thickness of a film) on the mechanical characteristics, which are amplified with downturn of temperature is registered.

KEY WORDS: polyimides, limit of forced elasticity, ultimate strength, deformability

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНАЯ ДЕФОРМАЦИЯ И ПРОЧНОСТЬ ПОЛИИМИДНЫХ ПЛЕНОК В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ТОЛЩИНЫ И СКОРОСТИ ДЕФОРМИРОВАНИЯ

В.А. Лотоцкая¹, Л.Ф. Яковенко¹, Е.Н. Алексенко¹, В.В. Абраимов², Wen Zhu Shao²

¹*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины*

пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина

²*Харбинский Политехнический институт
г. Харбин, КНР*

В работе изучены механические свойства (предел вынужденной эластичности, предел прочности и суммарная деформация до разрушения) полиимидных пленок типа kapton H (производства КНР) разной толщины в интервале скоростей деформации 10^{-4} - 10^{-3} с⁻¹ при температурах 77 и 293 К. Установлено, что пленки при обеих температурах деформации находятся в вынуждено-эластическом состоянии. Определены вклады в суммарную деформацию упругой, высокоэластической (обратимой при температуре испытания и задержанной), и необратимой составляющих. При выдержке образцов после разрушения или предварительной деформации при комнатной температуре обнаружено протекание релаксационных процессов, связанных с вкладом задержанной эластической деформации, сопровождающееся сокращением их длины. Полное снятие задержанной эластической деформации происходит после отжига при 623 К. Установлена чувствительность предела вынужденной эластичности s_b и вклада обратимой при температуре испытания эластической деформации к скорости деформации. Зарегистрировано влияние масштабного фактора (толщины пленки) на механические характеристики, усиливающиеся с понижением температуры.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: полиимиды, предел вынужденной эластичности, предел прочности, деформируемость

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНА ДЕФОРМАЦІЯ І МІЦНІСТЬ ПОЛІІМІДНИХ ПЛІВОК ЗАЛЕЖНО ВІД ТОВЩИНИ ТА ШВИДКОСТІ ДЕФОРМУВАННЯ

В.О. Лотоцька¹, Л.Ф. Яковенко¹, Є.М. Алексенко¹, В.В. Абраїмов², Wen Zhu Shao²

¹*Фізико-технічний інститут низьких температур ім. Б.І. Веркіна НАН України*

пр. Науки, 47, м. Харків, 61103, Україна

²*Харбінський Політехнічний інститут
м. Харбін, КНР*

У роботі вивчені механічні властивості поліімідних плівок типу kapton H (виробництва КНР) різної товщини в інтервалі швидкостей деформації 10^{-4} - 10^{-3} с⁻¹ при температурах 77 та 293 К. Установлено, що плівки при обох температурах деформації перебувають у вимушено еластичному стані. Визначені внески в сумарну деформацію пружної, високоеластичної (оборотної при температурі випробування та затриманої) і необоротної складових. При витриманні зразків після руйнування або попередньої деформації при кімнатній температурі виявлено протікання релаксаційних процесів, пов'язаних з внеском вимушеної еластичної деформації, що супроводжується скороченням їх довжини. Повне зняття вимушеної еластичної деформації відбувається після відпала при 623 К. Установлена чутливість границі вимушеної еластичності s_b і внеску оборотної при температурі випробування еластичної деформації до швидкості деформації. Зареєстрований вплив масштабного фактора (товщини плівки) на механічні характеристики, що підсилюється зі зниженням температури.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: полііміди, границя змушеної еластичності, межа міцності, деформованість

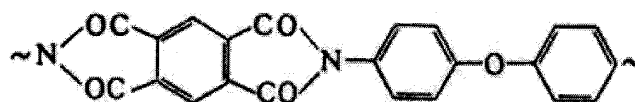
За последние 30 лет одной из основных тенденций в области создания космических аппаратов (КА) нового поколения является увеличение, приблизительно на 30%, применения полимерных материалов в элементах конструкций КА и аппаратуре. При этом вследствие возрастания доли КА, осуществляющих длительные миссии в пределах солнечной системы, расширяется диапазон температур, при которых они эксплуатируются.

Наибольшее применение в аэрокосмической технике США, России, ЕС и КНР находят полимеры из класса полиимидов благодаря удачному сочетанию целого ряда физических свойств, обеспечивающих требуемые эксплуатационные характеристики. Полиимидные материалы, по сравнению с другими полимерами, обладают высокой термо- и радиационной стойкостью, хорошими диэлектрическими свойствами, высокой прочностью и деформируемостью в интервале температур $\sim 150\div 500$ К. Вместе с тем, исследования механических характеристик полиимидных материалов в области низких температур в настоящее время еще не носят систематического характера. Полиимидные материалы, на которых изучали влияние низких температур на механические свойства, в большинстве своем не были сопоставимы не только по химическому строению, но и по технологии получения и геометрическим параметрам, что затрудняет детальное сравнение этих результатов [1-9].

Целью настоящей работы является исследование закономерностей деформации и прочности двух полиимидных пленок разной толщины, характеризующихся одной химической формулой полимера и изготовленных по одной технологии при температурах 293 К и 77 К. Метод механических испытаний - одноосное растяжение в интервале скоростей деформации 10^{-4} - 10^{-3} с $^{-1}$.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Объектом исследования являлись термопластичные пленки ароматического полиимида – поли-4,4'-дифениленоксидпиромеллитимида - производства КНР (аналог пленки ПМ-А производства России и kapton H производства США) толщиной 75 и 125 мкм. Строение мономера представлено структурной формулой



Образцы для испытания полиимидных пленок при одноосном растяжении (рис.1) получали с помощью специального штампа. Ось растяжения совпадала с направлением протяжки пленки. Форма и размеры образца близки образцу типа 1 по ГОСТ 11262-80, который допускается к использованию для испытаний на растяжение пленочных полимерных образцов (ГОСТ 14236-81). Крепление образца осуществляется в специальных захватах. Захват состоит из ролика, вокруг которого огибается лопатка образца и двух прижимов, захватывающих ролик с лопаткой.

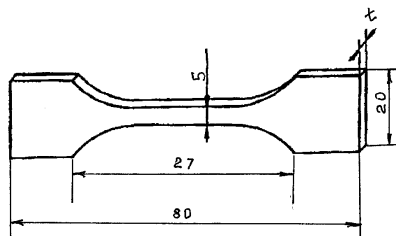


Рис.1. Форма образца (толщина образца t - 75 мкм или 125 мкм).

Деформирование образцов на воздухе (293 К) и в жидком азоте (77 К) в условиях одноосного растяжения проводили на разрывной машине FPZ-100/1 в специальных захватах при трех скоростях перемещения активного штока $V_{\text{деф}} = 0,85; 4,6$ и $7,6$ мм/мин и, соответственно, при скоростях деформирования $\dot{\epsilon} = 7 \cdot 10^{-4}; 3,8 \cdot 10^{-3}$ и $6 \cdot 10^{-3}$ с $^{-1}$ ($\dot{\epsilon} = V_{\text{деф}}/L_0$, где L_0 - исходная рабочая длина образца). Перед низкотемпературным испытанием образец, находящийся в деформирующем устройстве, выдерживался в криостате с жидким азотом не менее 30 мин.

В процессе деформирования записывали диаграмму растяжения в координатах «нагрузка P - удлинение ΔL », из которой определяли следующие механические характеристики: условный предел вынужденной эластичности, соответствующий напряжению, при котором высокоэластическая деформация составляет 1%, $\sigma_{\text{в}} = P_{1\%}/S_0$; предел прочности (напряжение разрыва образца) $\sigma_{\text{р}} = P_{\text{р}}/S_0$, где S_0 – начальное сечение образца; общее удлинение $\Delta L_{\text{общ}}$, соответствующее моменту разрыва образца; удлинение $\Delta L_{\text{упр}}$, соответствующее упругому участку кривой.

Согласно [9] общее удлинение $\Delta L_{\text{общ}}$ полимеров, в зависимости от температуры деформирования и структурного состояния, может включать в себя несколько различных вкладов: обратимое (упругое) удлинение $\Delta L_{\text{упр}}$, связанное с нерелаксированным модулем упругости полимера, удлинение $\Delta L_{\text{эласт1}}$, обусловленное высокоэластической деформацией, обратимой при температуре испытания, удлинение $\Delta L_{\text{эласт2}}$, обусловленное

задержанной высокоэластической деформацией, и удлинение $\Delta L_{\text{необр}}$, отвечающее необратимой деформации, не исчезающей при нагревании вплоть до температуры плавления $T_{\text{пл}}$. Таким образом

$$\Delta L_{\text{общ}} = \Delta L_{\text{упр}} + \Delta L_{\text{эласт1}} + \Delta L_{\text{эласт2}} + \Delta L_{\text{необр}}. \quad (1)$$

Величины $\Delta L_{\text{общ}}$ и $\Delta L_{\text{упр}}$, как уже отмечалось, определяли по диаграмме деформирования (рис.2). Остальные вклады, схематически представленные на рис.2 на разных участках диаграммы, измеряли по изменению длины рабочей части образца после деформации. Перед испытанием на рабочей части образца вблизи галтелей¹ наносились реперные линии, расстояние между которыми (величину исходной рабочей длины образца L_0 и конечную длину после испытания L_k) измеряли на компараторе ИЗА-2 с точностью до ± 1 мкм. Величину ΔL под нагрузкой и сразу после снятия нагрузки при температуре деформации измеряли катетометром КМ-2 с той же точностью. На образцах, деформированных при комнатной температуре, был определен вклад обратимого при температуре опыта удлинения $\Delta L_{\text{эласт1}}$. Для этого представим последние два вклада в формуле (1) как остаточное удлинение, величина которого $\Delta L_{\text{ост}} = \Delta L_{\text{эласт2}} + \Delta L_{\text{необр}} = (L_k - L_0)$. Величину высокоэластического удлинения $\Delta L_{\text{эласт1}}$ определяли из соотношения (1). Нормируя полученные значения $\Delta L_{\text{общ}}$, $\Delta L_{\text{упр}}$, $\Delta L_{\text{ост}}$ и $\Delta L_{\text{эласт1}}$ на величину исходной рабочей длины образца L_0 , получали соответствующие значения относительной деформации $\epsilon_{\text{общ}}$, $\epsilon_{\text{упр}}$, $\epsilon_{\text{ост}}$ и $\epsilon_{\text{эласт1}}$.

Для определения вклада истинной необратимой деформации и общей величины высокоэластической деформации ($\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}}$) образцы, деформированные до разрушения при обеих температурах, были термообработаны при 623 К (350°C) в течение 2 час на воздухе. Согласно [9] нагрев до этой температуры, находящейся вблизи верхней границы работоспособности - температуры размягчения полимера $T_p = 650$ К, обеспечивает полную релаксацию задержанной вынужденной эластической деформации. Величину $\Delta L_{\text{необр}}$ определяли по разности расстояния между реперными линиями после испытания и отжига и в исходном состоянии ($L_{\text{отж}} - L_0$).

Все указанные механические характеристики представлены далее как средние значения по результатам испытаний 2-4-х образцов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 3 представлены типичные диаграммы растяжения образцов полиимидной пленки разной толщины в координатах «напряжение – деформация» при температурах 293 и 77 К и скорости деформации $7 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$.

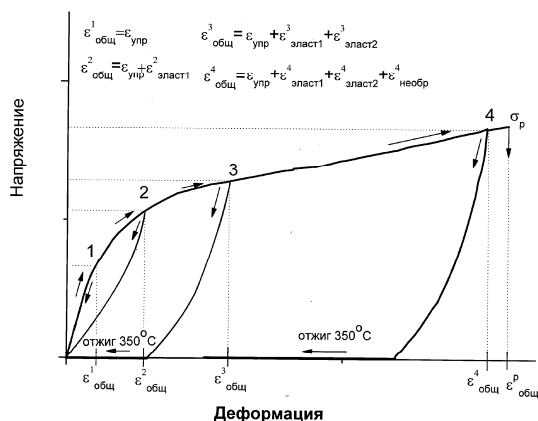


Рис.2. Деформационная кривая при нагружении и разгрузке полиимидной пленки толщиной 75 мкм, деформированной при скорости деформации $7 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$ до некоторых нагрузок (1,2,3,4) при 293 К

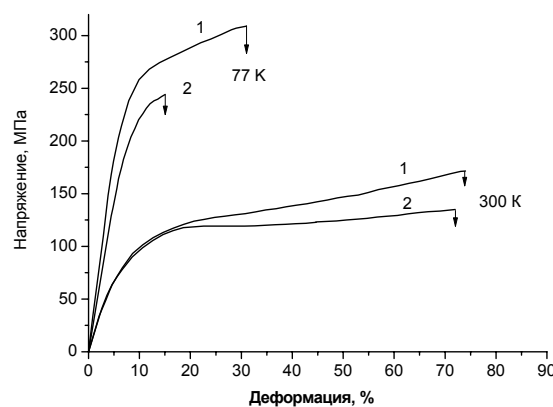


Рис.3. Типичные кривые растяжения полиимидной пленки толщиной 75 мкм (1) и 125 мкм (2) при различных температурах и скорости деформации $7 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$

Взаимное расположение этих диаграмм и их характер не зависят от скорости растяжения образцов. Все диаграммы растяжения содержат две стадии - линейную и нелинейную. Для выяснения деталей процесса деформирования пленок в этих условиях несколько образцов были нагружены в пределах линейной и нелинейной стадий диаграммы и затем разгружены (рис.2). При нагружении ниже напряжения отклонения от линейности на кривой ($\sigma - \epsilon$) (1, рис.2) при обеих температурах пленки испытывают только упругую деформацию и диаграммы при нагружении и разгрузке совпадают. После нагружения образца на начальный участок второй нелинейной стадии (2, рис.2) при последующей разгрузке до $\sigma=0$ наблюдается гистерезис хода кривой ($\sigma - \epsilon$). При этом вся деформация, запасенная в образце, при разгрузке продолжает оставаться полностью обратимой. При дальнейшем нагружении вплоть до $\sigma \sim 90\% \sigma_p$ (3,4, рис.2) гистерезис хода кривой

¹ Реперные линии наносились гелем без нарушения целостности поверхности пленки.

при разгрузке продолжает наблюдаться, но обратимой при температуре эксперимента остается часть запасенной деформации. Аналогичным образом ведут себя образцы, деформированные до этих величин нагрузки при 77 К. Пленки при обеих температурах деформации, таким образом, находятся в области вынужденной эластичности.

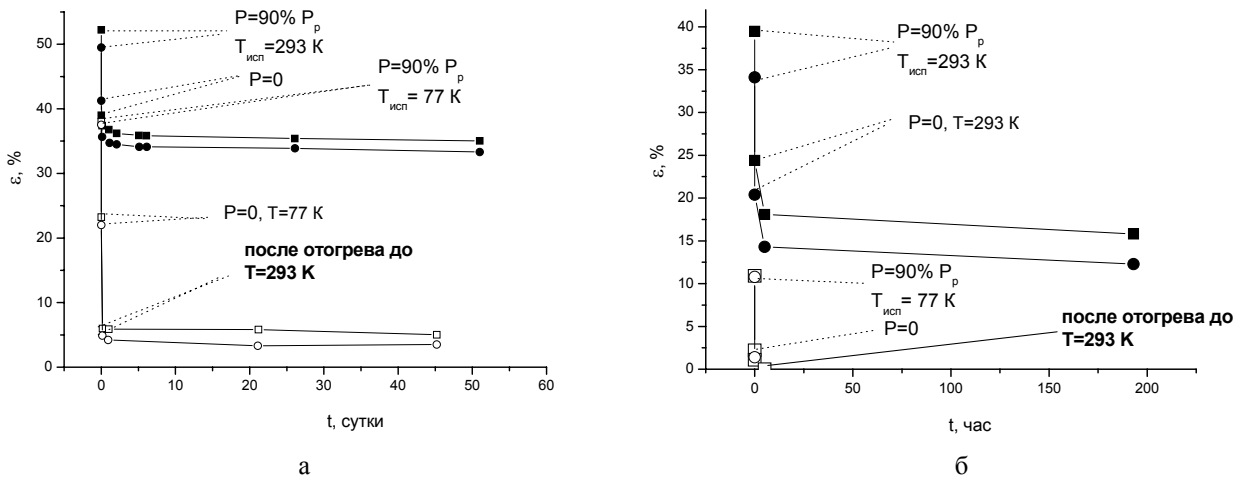


Рис.4. Зависимости остаточной деформации образцов пленок толщиной 75 мкм (а) и 125 мкм (б), деформированных при 293 К и 77 К, от времени выдержки при комнатной температуре

Для выяснения природы остаточной деформации на пленках, деформированных при обеих температурах испытания, после разгрузки были проведены эксперименты по измерению изменения величины остаточной деформации образцов от времени выдержки при комнатной температуре (рис.4 а,б). Было обнаружено, что пленки обеих толщин, деформированные как при 293, так и при 77К, находятся в неравновесном состоянии, в них протекают релаксационные процессы и длина рабочей части сокращается. Релаксационные процессы можно разделить на две группы. К первой группе относятся процессы, протекающие быстро, в течение первых часов, ко второй – развивающиеся медленно и продолжающиеся даже после выдержки более 60 суток, т.е. часть остаточной деформации можно рассматривать как задержанную высокоэластическую. После деформации пленок при $T = 77 \text{ K}$ часть задержанной после разгрузки вынужденной эластической деформации релаксирует уже при отогреве до комнатной температуры, что согласуется с данными, приведенными в [8]. При этом в образцах пленки толщиной 75 мкм медленные релаксационные процессы продолжают при комнатной температуре, а в образцах пленки толщиной 125 мкм остаточная деформация после отогрева близка к нулю. Т.о., использовать измерение остаточного удлинения при комнатной температуре для вычисления величины $\Delta L_{\text{эласт1}}$, отвечающей быстрым релаксационным процессам, можно только для образцов, деформированных до разрушения при 293 К, а для образцов, деформированных при 77 К, некорректно. Величины задержанной вынужденной эластической деформации были, как указано в методике, определены после отжига вблизи T_p .

На рис. 5 представлены зависимости средних значений условного предела вынужденной эластичности σ_v , предела прочности σ_p и суммарной относительной деформации до разрушения $\epsilon_{\text{общ}}$ исследованных полиимидных пленок от температуры и скорости деформации.

Из рис.5 видно, что исследуемые пленки проявляют сильную температурную зависимость механических характеристик. Понижение температуры от 293 до 77 К сопровождается возрастанием значений σ_v и σ_p и уменьшением значений $\epsilon_{\text{общ}}$. В табл.1 приведены относительные изменения средних значений характеристик прочности и деформации при температурах 293 и 77 К. Видно, что основной вклад в повышение прочностных характеристик при понижении температуры вносит рост предела вынужденной эластичности.

Возрастание скорости деформации (рис.5) полиимидных пленок почти на порядок как при 293 К, так и при 77 К приводит к незначительному изменению значений σ_p и $\epsilon_{\text{общ}}$. При возрастании скорости деформации значения σ_p и $\epsilon_{\text{общ}}$ как при 293 К, так и при 77 К колеблются в пределах 5-8% (что не превышает разброса значений этих характеристик для отдельных образцов). Предел σ_v является наиболее чувствительной характеристикой, его значения демонстрируют устойчивое увеличение до 25-30% при 293 К для обеих пленок и до ~17% при 77 К для более толстой пленки.

Степень влияния масштабного фактора (толщины пленки) на механические характеристики изменяется с понижением температуры (рис.5). Так, при 293 К увеличение толщины пленки влияет, в основном, на σ_p , понижая его приблизительно в 1,3 раза. Значения σ_v и $\epsilon_{\text{общ}}$ изменяются не более, чем на 5-8%. В то же время при 77 К уже все изучаемые характеристики пленки толщиной 125 мкм заметно снижают свои значения по сравнению с более тонкой пленкой. Предел σ_v уменьшается при 77 К–на ~17%, суммарная деформация до разрушения $\epsilon_{\text{общ}}$ – на 50%, относительное уменьшение σ_p остается на прежнем уровне. При этом в образцах более толстой пленки отношение σ_v/σ_p при обеих температурах выше и имеет заметную скоростную

чувствительность (табл.1). При 77 К и скорости деформации $\dot{\epsilon}_3=6 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$ отношение σ_B/σ_P в пленке толщиной 125 мкм достигает 81%. Известно[10, 11], что полимер начинает разрушаться хрупко без заметной предварительной деформации, если предел вынужденной эластичности сравнивается с пределом прочности. Тогда наши данные свидетельствуют, что пленка толщиной 125 мкм должна достигнуть температуры хрупкости T_{xp} (нижней границы области вынужденной эластичности) при более высокой температуре, которая к тому же будет возрастать с повышением скорости деформации.

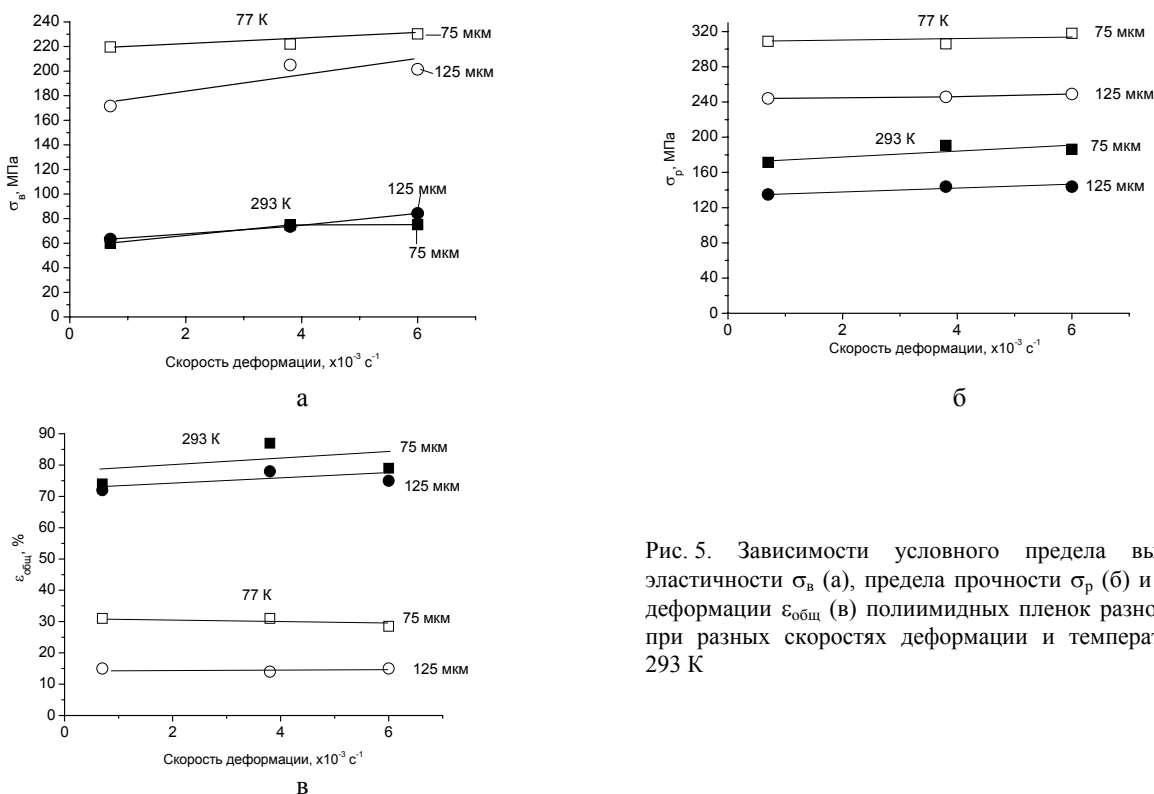


Рис. 5. Зависимости условного предела вынужденной эластичности σ_B (а), предела прочности σ_P (б) и суммарной деформации $\epsilon_{общ}$ (в) полиимидных пленок разной толщины при разных скоростях деформации и температурах 77 и 293 К

Таблица 1

Относительное изменение средних значений характеристик прочности и деформируемости исследованных полиимидных пленок при 293 и 77 К.

Толщина пленки t, мкм	$\frac{\sigma_{в293К}}{\sigma_{в77К}}$	$\frac{\sigma_{р77К}}{\sigma_{р293К}}$	$\frac{\sigma_{в77К}}{\sigma_{в293К}}$	$\frac{\sigma_{р77К}}{\sigma_{р293К}}$	$\frac{\epsilon_{293К}}{\epsilon_{77К}}$
	$\dot{\epsilon}_1=7 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$				
75	0,35	0,71	3,7	1,8	2,4
125	0,47	0,71	2,7	1,8	4,8
$\dot{\epsilon}_2=3,8 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$					
75	0,39	0,73	3,0	1,6	2,8
125	0,51	0,83	2,8	1,7	5,6
$\dot{\epsilon}_3=6 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$					
75	0,4	0,72	3,1	1,7	2,8
125	0,58	0,81	2,4	1,7	5,0

Теперь рассмотрим влияние понижения температуры и увеличения скорости деформации на составляющие суммарной относительной деформации образца до разрыва $\epsilon_{общ}$, такие как: упругая $\epsilon_{упр}$, высокоэластическая деформация $\epsilon_{эласт1}$, обратимая при температуре испытания ($T=293 \text{ К}$), полная вынужденная эластическая ($\epsilon_{эласт1} + \epsilon_{эласт2}$) и необратимая деформация $\epsilon_{необр}$. На рис. 6 и табл.2 представлены зависимости средних значений этих характеристик от температуры и скорости деформации. В табл. 3 для трех скоростей деформации приведены относительные изменения значений $\epsilon_{общ}$ и ее составляющих $\epsilon_{упр}$ и ($\epsilon_{эласт1} + \epsilon_{эласт2}$) при понижении температуры, а также соотношение вкладов $\epsilon_{эласт1}$, ($\epsilon_{эласт1} + \epsilon_{эласт2}$) и $\epsilon_{необр}$ в $\epsilon_{общ}$.

Анализируя приведенные результаты, следует отметить, что при обеих температурах испытания основной вклад в общую деформацию вносит полная вынужденная эластическая составляющая ($\epsilon_{эласт1} + \epsilon_{эласт2}$). Значение $\epsilon_{упр}$ при этом колеблется незначительно и не оказывает заметного влияния на изменение значений $\epsilon_{общ}$. При

комнатной температуре относительный вклад $(\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}})/\epsilon_{\text{общ}}$ не зависит ни от толщины пленки и ни от скорости деформации (табл.3), что согласуется с данными [12]. Однако вклад деформации, обратимой при температуре испытания, в полную эластическую $\epsilon_{\text{эласт1 293K}}/(\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}})_{293K}$ зависит от толщины пленки. При этом, если в пленке толщиной 75 мкм уменьшение данной величины со скоростью деформации слабое и может трактоваться как случайное, то в пленке толщиной 125 мкм величина этого вклада достаточно существенно зависит от скорости деформации и резко уменьшается с ее увеличением.

При комнатной температуре в обеих пленках наблюдается также необратимая деформация, сохраняющаяся вплоть до T_p , которая может быть связана либо с пластическими, либо с вязко-текучими процессами при нагружении. Вклад необратимой деформации в общую деформацию не зависит ни от скорости, ни от толщины пленки.

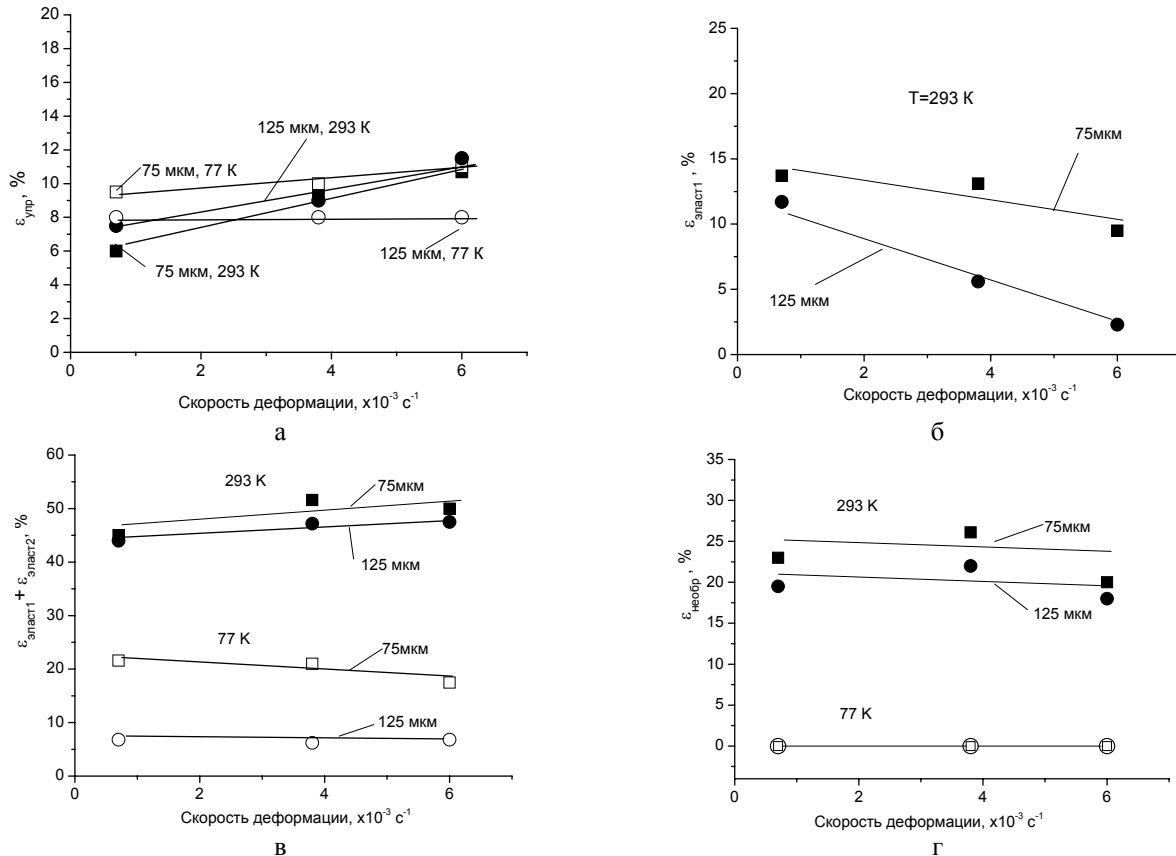


Рис.6. Зависимости средних значений упругой $\epsilon_{\text{упр}}$ (а), высокоэластической обратимой при температуре испытания $\epsilon_{\text{эласт1}}$ (б), полной высокоэластической ($\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}}$) (в) и необратимой деформации $\epsilon_{\text{необр}}$ (г) полиимидных пленок разной толщины от скорости деформации при температурах 77 и 293 K

При 77 K величины суммарной и полной вынужденной эластической деформаций снижаются в несколько раз: в $\sim 2,5$ раза ($\epsilon_{\text{общ}}$ и $\epsilon_{\text{эласт1+2}}$) в пленке 75 мкм и в ~ 5 ($\epsilon_{\text{общ}}$) и $\sim 6,5$ ($\epsilon_{\text{эласт1+2}}$) в пленке 125 мкм. Вклад необратимой деформации отсутствует в обеих пленках. Вся остаточная деформация, наблюдаемая при отогреве до комнатной температуры, оказывается задержанной эластической (исчезает после отжига при 623 K). Поскольку общая деформация до разрушения при 77 K существенно ниже ($\epsilon_{\text{общ}} = 31\%$, 75 мкм и $\epsilon_{\text{общ}} = 15\%$, 125 мкм), чем при 293 K, а необратимая деформация начинает происходить на нелинейной стадии после значительного участка полностью обратимой деформации, то, вполне вероятно, что при 77 K этот уровень деформаций уже не достигается. Для проверки образцы обеих пленок были продеформированы при комнатной температуре до величин суммарной деформации, соответствующих суммарной деформации до разрушения при 77K, и затем проведен отжиг при 350°C. Установлено, что при этих степенях деформации как при 77 K, так и при 293 K суммарная деформация включает, кроме упругой, только высокоэластическую деформацию, что согласуется с результатами [12]. Важно отметить, что при этом относительный вклад полной эластической деформации $\epsilon_{\text{эласт1+2}}/\epsilon_{\text{общ}}$ в пленке толщиной 75 мкм при всех скоростях деформации сохраняется на том же уровне $\sim 0,6$, что и при комнатной температуре в обеих пленках, а в пленке толщиной 125 мкм он понижается до 0,45. Скоростная чувствительность вклада полной эластической деформации при 77K, так же как и при 293 K отсутствует.

Таблица 2

Средние значения суммарной относительной деформации до разрыва $\epsilon_{\text{общ}}$ и ее составляющих исследованных полиимидных пленок при температурах 77 и 293 К

Толщина пленки t, мкм	T, К	$\epsilon_{\text{общ}}$, %	$\epsilon_{\text{упр}}$, %	$\epsilon_{\text{эласт1}}$, %	$\epsilon_{\text{эл1}} + \epsilon_{\text{эл2}}$, %	$\epsilon_{\text{необр}}$, %
$\dot{\epsilon}_1 = 7 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$						
75	293	74	6,5	13,7	45	22,5
125		72	7,5	11	44	20,5
75	77	31	9,5		21,6	0
125		15	8,0		6,8	0
$\dot{\epsilon}_2 = 3,8 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$						
75	293	87	9,5	13,0	51,4	26,1
125		78	8,0	5,5	47,2	22,8
75	77	31	10,0		21	0
125		14	8,0		6,2	0
$\dot{\epsilon}_3 = 6 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$						
75	293	79	11,0	9,5	48	20
125		75	11,0	2,5	46	18
75	77	28,5	11,0		17,5	0
125		15	8,0		6,9	0

Таблица 3

Соотношения средних значений суммарной относительной деформации и ее составляющих $\epsilon_{\text{упр}}$, $\epsilon_{\text{эласт}}$ и $\epsilon_{\text{ост}}$ исследованных полиимидных пленок при температурах 77 и 293 К и разных скоростях деформации

Толщина пленки t, мкм	$\frac{\epsilon_{\text{общ}293\text{К}}}{\epsilon_{\text{общ}77\text{К}}}$	$\frac{\epsilon_{\text{упр}293\text{К}}}{\epsilon_{\text{упр}77\text{К}}}$	$\frac{\epsilon_{\text{эласт}(1+2)293\text{К}}}{\epsilon_{\text{эласт}(1+2)77\text{К}}}$	$\frac{\epsilon_{\text{эласт}(1)293\text{К}}}{\epsilon_{\text{эласт}(1+2)293\text{К}}}$	$\frac{\epsilon_{\text{эласт}(1+2)293\text{К}}}{\epsilon_{\text{общ}293\text{К}}}$	$\frac{\epsilon_{\text{эласт}(1+2)77\text{К}}}{\epsilon_{\text{общ}77\text{К}}}$	$\frac{\epsilon_{\text{необр}293\text{К}}}{\epsilon_{\text{общ}293\text{К}}}$
	$\dot{\epsilon}_1 = 7 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$						
75	2,4	0,7	2,1	0,3	0,61	0,7	0,3
125	4,8	0,95	6,5	0,25	0,61	0,45	0,28
$\dot{\epsilon}_2 = 3,8 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$							
75	2,8	0,95	2,5	0,25	0,59	0,68	0,3
125	5,6	1,25	7,6	0,12	0,61	0,44	0,29
$\dot{\epsilon}_3 = 6 \cdot 10^{-3} \text{ c}^{-1}$							
75	2,8	1,0	2,7	0,2	0,61	0,61	0,25
125	5,0	1,4	6,7	0,06	0,61	0,46	0,24

Итак, в исследованном интервале скоростей деформации и температур механические характеристики пленок слабо зависят скорости деформации. Чувствительность к изменению скорости деформации обнаруживают только предел вынужденной эластичности и вклад обратимой при температуре опыта эластической деформации. Согласно [10, 11] скорость развития вынужденной эластической деформации (перегруппировки сегментов цепных молекул и целых молекулярных агрегатов под действием внешних сил) включает в себя комплекс релаксационных процессов, среди которых есть такие, времена релаксации которых сопоставимы с временем механического воздействия и соответственно их развитие зависит от скорости деформации. В нашем случае наличие группы процессов с малыми временами релаксации подтверждает характер зависимости удлинения деформированных образцов от времени выдержки после разгрузки.

Зависимость механических свойств от температуры сильная в обеих пленках. При этом влияние разной толщины пленок существенно проявляется при понижении температуры. При 77 К с увеличением толщины пленки увеличивается скорость релаксационных процессов при отогреве до комнатной температуры, уменьшается относительный вклад вынужденной эластической деформации в общую, возрастание предела σ_b с понижением температуры существенно отстает от такового в более тонкой пленке, но при этом отношение $\sigma_b/\sigma_p \rightarrow 1$ быстрее и имеет скоростную чувствительность. Такое поведение может быть обусловлено несколькими причинами. С одной стороны, согласно [10] влияние масштабного фактора связано просто с увеличением числа дефектов в более толстой пленке. Однако при комнатной температуре его влияние достаточно слабое. С другой, необходимо учесть, что при изменении толщины пленки [13] и охлаждении до низких температур [14] ранее наблюдалось изменение степени ориентационной перегруппировки гибких

макромолекул полипиромеллитимида в сторону большей упорядоченности. Также возможно изменение механизмов, контролирующих деформацию пленок при низких температурах [9], что может по – разному влиять при различной степени упорядоченности структуры. Поэтому основной причиной различия механических свойств пленок при 77 К предполагается большая степень упорядоченности структуры при увеличении толщины пленки, что приводит к появлению более высоких энергетических барьеров при перестройке надмолекулярной структуры и сильнее проявляется при уменьшении термических флуктуаций. Для проверки гипотезы в дальнейшем будут проведены рентгеноструктурные исследования.

ВЫВОДЫ

1. Определены характеристики прочности (σ_v и σ_p) и суммарной деформации до разрушения $\epsilon_{\text{общ}}$ двух полиимидных пленок типа картон Н (пр-ва КНР) разной толщины (75 и 125 мкм) при температурах 293 и 77 К в интервале скоростей деформации 10^{-4} - 10^{-3} с $^{-1}$. Установлено, что механические характеристики исследованных полиимидных пленок имеют сильную температурную зависимость. При понижении температуры от 293 К до 77 К характеристики прочности возрастают, а величина деформации снижается.
2. Установлено, что кривые деформации имеют две стадии: линейную и нелинейную, а суммарная деформация $\epsilon_{\text{общ}}$ пленок имеет составляющие, связанные с упругой деформацией $\epsilon_{\text{упр}}$, происходящей на линейной стадии, и вынужденной эластической ($\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}}$) и необратимой деформацией $\epsilon_{\text{необр}}$, протекающих на нелинейной стадии. Полная вынужденная эластическая деформация состоит из высокоэластической деформации $\epsilon_{\text{эласт1}}$, обратимой при температуре испытания, и задержанной эластической деформации $\epsilon_{\text{эласт2}}$. Наличие в образцах задержанной эластической деформации приводит к сокращению длины образцов при выдержке при 293К после разрушения или предварительной деформации. Полное снятие задержанной эластической деформации происходит после отжига при 623 К.
3. Обнаружена скоростная чувствительность предела вынужденной эластичности σ_v и вклада высокоэластической деформации $\epsilon_{\text{эласт1}}$, обратимой при температуре испытания. Скоростная чувствительность предела прочности σ_p , суммарной деформации $\epsilon_{\text{общ}}$ и ее составляющих: упругой, полной эластической и необратимой деформации практически отсутствует.
4. Обнаружено влияние масштабного фактора (толщины пленки) на механические характеристики полиимидных пленок, усиливающееся с понижением температуры.
5. Увеличение влияния толщины пленки на механические характеристики при 77 К, повышение скоростной чувствительности $\epsilon_{\text{эласт1}}$ в более толстой пленке и др. позволяют предположить различную степень упорядочения молекулярной структуры исследованных пленок разной толщины.

Авторы признательны Лубенцу С.В. и Нацкику В.Д. за прочтение текста статьи и ценные замечания, высказанные в процессе ее обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Sorgolova T.I. Demina M.I. Temperaturnaya zavisimost' mekhanicheskikh svoystv polimerov razlichnogo himicheskogo stroeniya v intervale temperatur ot 4.2 K do 300 K [Temperature dependence of mechanical properties of polymers with various chemical structure in the temperature interval from 4,2 up to 300 K] // *Mechanika polimerov* [Mechanics of Polymers].-1977.-No.3.-P.387-391 (in Russian).
2. A.David Grove Polyimide x-ray filter substrates optimized for cryogenic temperatures // *Proc. SPIE 3766, X-Ray Optics, Instruments, and Missions II*, 386 (September 29, 1999); doi:10.1117/12.363653 (<http://www.luxel.com>).
3. E. Tschegg, K. Humer and H.W. Weber Mechanical properties and fracture behaviour of polyimide (SINTIMID) at cryogenic temperatures // *Cryogenics*.- 1991.-Vol.31, October.-P.878 – 883.
4. Malay K.Ghosh, K.L.Mittal Polyimides Fundamentals and Applications, Marcel Dekker Inc., New York.-1996.
5. Abraimov V.V., Agashkova N.N., Bone L., Budnyak I.V., Velichko N.I., Krevsun A.V., Kostenko V.I., Lura F., Markus A.M. Kompleksnye issledovaniya fiziko-mekhanicheskikh svoystv materialov svetopogloshchayushchih pokrytiy kosmicheskikh apparatov proektov "Mars-96" i "Regata" pod vozdeystviem faktorov kosmicheskogo prostranstva [Complex researches of physico-mechanical properties of materials of light-absorbing coverings of space vehicles of projects «Mars -96» and "Regatta" under influence of space factors] // *Kosmichna nauka i tehnologiya* [Space Science and Technology].-1995.-Vol.1, No.1.-P.57-68 (in Russian).
6. Abraimov V.V., Lototskaya V.A., Salteviskiy G.I., Zaritskiy I.P Investigation of mechanical properties of polyimide materials in the 4.2-300 K temperatures interval // *Conference Abstracts of 4th Inter. Conf. "Space technologies; the present and the future"*, 17-19 April 2013.- Dnepropetrovsk.- Kyiv - P.88.
7. Abraimov V.V., Lototskaya V.A., Zaritskiy I.P. Investigation of peculiarities of mechanical properties of some polymeric materials in the 4.2-300 K temperatures interval // *Conference Abstracts of 4th Inter. Conf. "HighMatTech-2013"*, 7-11 October 2013.- Kyiv.- Ukraine.- P.278.
8. Soldatov V.P., Kirichenko G.I., Abraimov V.V., Braude I.S., Geidarov V.G. The laws of deformation of an amorphous polyimide (PI) film when it is stretched in the temperature range 1,6-300 K//*Low Temperature Physics*.-2016.- No.9.-P.1043-1052.
9. Bessonov M.I., Koton M.M., Kudryavtsev V.V., Layus L.A. Polyimidnyy – klass termostoykikh polymerov [Polyimides – class of heat-resistant polymers].-L.: Nauka.-1984.-328 p. (in Russian).
10. Bartenev G.M., Zuev Yu.S. Prochnost' i razrushenie vysokoelastichnykh materialov [Strength and rupture of highly elastic

- materials M.-L: Izd-vo «Himiyu», 1964.- 335 p. (in Russian).
11. Kargin V.A., Slonimskiy G.L. Kratkie ocherki po fiziko-chimii polymerov [Brief sketches in physics & chemistry of polymers].-M.-L: Izd-vo «Himiyu», 1967.- 232 p. (in Russian).
 12. Lur'e E.G., Kovriga V.V. K voprosu o edinstve mehanizma deformatsii i samoproizvol'nogo udlineniya jestkotsepnnyh polymerov [To a question about unity of the deformation mechanism and spontaneous lengthening of rigidly chain polymers] // Mechanics of polymers.-1977.- No.4.-P.587-593 (in Russian).
 13. Lur'e E.G., Kazaryan L.G., Uchastkina E. L., Kovriga V.V. Vlasova K.N., Dobrohotova M.L., Emel'yanova L.N. Struktura polypirromellitimida i ee vliyanie na fisiko-mehanicheskie svoystva [Structure of polypirromellitimide and its influence on physico- mechanical properties] //Vysokomolekulyarnye soedineniya .-1974.-Vol.(A) XIII. - No.3. - P.603-607 (in Russian).
 14. Braude I.S., Gal'tsov N.N., Geidarov V.G., Kirichenko G.I., Abraimov V.V. Effect of deformation and temperature on ordering of polyimide PM-A - molecules. X-ray data // Low Temperature Physics.-2016.- Vol.42. - No.3.- P.204-207.

PACS: 29.25.Dz; 29.30.Hs; 07.05.Kf; 06.20.Dk

MEASUREMENT OF THE MAIN CHARACTERISTICS OF PuBe AND $^{238}\text{PuBe}$ NEUTRON SOURCES USING BONNER SPHERE SPECTROMETER WITH A ^3He -COUNTER

V.B. Ivanskyi, O.N. Letuchy, A.N. Orobinskyi, H.V. Siroko

National Scientific Centre «Institute of Metrology»

42, Mironosickaya Str., Kharkov, 61002, Ukraine

E-mail: orobin61@gmail.com

Received April 22, 2017

The energy and pulse height spectrum of PuBe and $^{238}\text{PuBe}$ neutron sources are measured without taking into account scattered radiation, taking into account this radiation (without the shadow cone) and own scattered radiation from these sources (with a shadow cone) using a NEMUS spectrometer on Bonner spheres with ^3He -counter. An analytical solution of the likelihood function equation is given, taking into account the fact that the counting rate of pulses obeys the chi-square distribution used to estimate the variances, the discrete Poisson distribution, and the normal distribution, using the Bayes theorem and the Lagrange multiplier method. The values of the main characteristics of neutron radiation are measured: neutron flux density, ambient dose rate equivalent, individual dose rate equivalent and average neutron radiation energy. Extensive uncertainties were obtained in the measurement of these characteristics with a confidence level of 0.95. Calculation of energy spectrum, basic characteristics of neutron radiation and extended uncertainties is performed by the MAXED (maximum entropy and deconvolution) method using the UMG_3.3 software.

KEY WORDS: NEMUS spectrometer on Bonner spheres, ^3He neutron counter, shadow cone, neutron radiation spectrum, Bayes theorem, response function, likelihood function, MAXED method, maximum entropy and deconvolution method, Shannon entropy, Lagrange multiplier method, neutron flux density

ВИМІРЮВАННЯ ОСНОВНИХ ХАРАКТЕРИСТИК PuBe ТА $^{238}\text{PuBe}$ ДЖЕРЕЛ НЕЙТРОНІВ ЗА ДОПОМОГОЮ СПЕКТРОМЕТРА НА СФЕРАХ БОННЕРА З ^3He -ЛІЧИЛЬНИКОМ

В.Б. Іванський, О.М. Летучий, А.М. Оробінський, Г.В. Сіроко

Національний науковий центр «Інститут метрології»,

42, вул. МIRONOSИЦЬКА, м. Харків, 61002, Україна

Виміряні енергетичні та амплітудно-імпульсні спектри PuBe і $^{238}\text{PuBe}$ джерел нейтронів без урахування розсіяного випромінювання, з урахуванням цього випромінювання (без тінювого конуса) і власне розсіяного випромінювання від даних джерел (з тінювим конусом) за допомогою спектрометра NEMUS на сферах Боннера з ^3He -лічильником. Наведено аналітичне рішення рівняння функції правдоподібності з урахуванням того, що швидкість лічення імпульсів відповідає розподілу хі-квадрат, яке застосовується для оцінки дисперсій, дискретному розподілу Пуассона та нормальному розподілу, з використанням теореми Байєса і метода множників Лагранжа. Виміряні значення основних характеристик нейтронного випромінювання: густини потоку нейтронів, потужності амбієнтного еквівалента дози, потужності індивідуального еквівалента дози та середньої енергії нейтронного випромінювання. Отримані розширені невизначеності при вимірюванні цих характеристик та довірчою імовірністю 0,95. Розрахунок енергетичних спектрів, основних характеристик нейтронного випромінювання та розширених невизначеностей виконано методом MAXED (максимальної ентропії та деконволюції) за допомогою програмного забезпечення UMG_3.3.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: спектрометр NEMUS на сферах Боннера, ^3He -лічильник нейтронів, тінювий конус, спектр нейтронного випромінювання, теорема Байєса, функція відгуку, функція правдоподібності, метод MAXED, метод максимальної ентропії та деконволюції, ентропія Шеннона, метод множників Лагранжа, густина потоку нейтронів

ИЗМЕРЕНИЕ ОСНОВНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК PuBe И $^{238}\text{PuBe}$ ИСТОЧНИКОВ НЕЙТРОНОВ С ПОМОЩЬЮ СПЕКТРОМЕТРА НА СФЕРАХ БОННЕРА С ^3He -СЧЕТЧИКОМ

В.Б. Иванский, А.Н. Летучий, А.Н. Оробинский, Г.В. Сироко

Национальный научный центр «Институт метрологии»,

42, ул. МIRONOSИЦЬКАЯ, г. Харьков, 61002, Украина

Измерены энергетические и амплитудно-импульсные спектры PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов без учета рассеянного излучения, с учетом этого излучения (без теневого конуса) и собственно рассеянного излучения от данных источников (с теньевым конусом) с помощью спектрометра NEMUS на сферах Боннера с ^3He -счетчиком. Приведено аналитическое решение уравнения функции правдоподобия с учетом того, что скорость счета импульсов подчиняется распределению хи-квадрат, применяемому для оценки дисперсий, дискретному распределению Пуассона и нормальному распределению, с использованием теоремы Байєса и метода множителей Лагранжа. Измерены значения основных характеристик нейтронного излучения: плотности потока нейтронов, мощности амбиентного эквивалента дозы, мощности индивидуального эквивалента дозы и средней энергии нейтронного излучения. Получены расширенные неопределенности при измерении данных характеристик при доверительной вероятности 0,95. Расчет энергетических спектров, основных характеристик нейтронного излучения и расширенных неопределенностей выполнен методом MAXED (максимальной энтропии и деконволюции) при помощи программного обеспечения UMG_3.3.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: спектрометр NEMUS на сферах Боннера, ^3He -счетчик нейтронов, теньевой конус, спектр нейтронного излучения, теорема Байєса, функция отклика, функция правдоподобия, метод MAXED, метод максимальной энтропии и деконволюции, энтропия Шеннона, метод множителей Лагранжа, плотность потока нейтронов

Одним из основных применений PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов является их использование при регулировке и калибровке дозиметров и радиометров нейтронного излучения.

В настоящее время для исследования спектров нейтронного излучения наряду с другими применяется спектрометр на сферах Боннера [1 – 4] с ³He-счетчиком [2].

Расчет спектров выполнен методом MAXED (максимальной энтропии и деконволюции) [5, 6], применяя теорему Байеса [7, 8].

В известной нам литературе [9 – 11] отсутствуют данные о спектрах PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов с учетом рассеянного излучения (без теневого конуса) и собственно рассеянного излучения (с теньевым конусом) от данных источников.

В данной работе измерены спектры PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов с целью:

- измерения плотности потока нейтронов, мощности амбиентного эквивалента дозы, мощности индивидуального эквивалента дозы, коэффициентов перехода от флюенса нейтронного излучения к амбиентному и индивидуальному эквиваленту дозы, средней энергии спектра нейтронного излучения без учета рассеянного излучения, с учетом этого излучения (без теневого конуса) и собственно рассеянного излучения от данных источников (с теньевым конусом);
- оценки расширенной неопределенности;
- сравнения спектров PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов.

НЕЙТРОННЫЙ СПЕКТРОМЕТР NEMUS НА СФЕРАХ БОННЕРА

Измерения спектров PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов выполнены с помощью спектрометра NEMUS (Neutron Multisphere Spectrometer) на сферах Боннера [2], разработанного в Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Braunschweig, Germany, с пропорциональным ³He-счетчиком нейтронов SP9 (далее по тексту – счетчик SP9) производства фирмы «Centronic Ltd», UK. Структурная схема спектрометра приведена на рис. 1 [12].

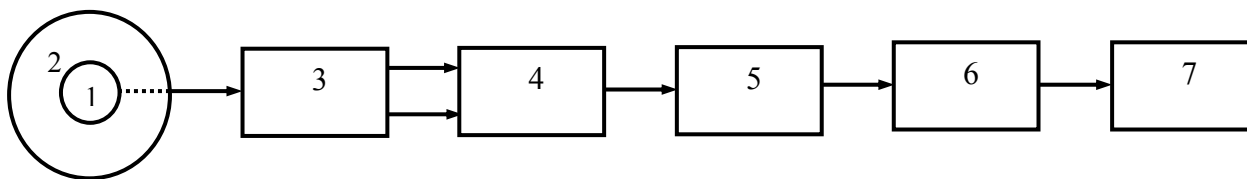


Рис. 1. Структурная схема спектрометра NEMUS на сферах Боннера.

- 1 – счетчик SP9 (диаметр – 32 мм) без сферы – 0W0iso (iso – изотропный, 0") (" – дюйм);
- 2 – сфера из чистого полиэтилена, применяется 10 сфер: 3W0 (d = 3"); 3W5 (d = 3,5"); 4W0 (d = 4"); 4W5 (d = 4,5"); 5W0 (d = 5"); 6W0 (d = 6"); 7W0 (d = 7"); 8W0 (d = 8"); 10W0 (d = 10") и 12W0 (d = 12"); d – диаметр сферы;
- 3 – универсальный аналоговый спектрометр AIOSAP-02;
- 4 – аналого-цифровой преобразователь АЦП FAST 7070;
- 5 – webMATE: Ethernet мультисканальный анализатор (MCA);
- 6 – NETGEAR FS108P: свич Ethernet;
- 7 – персональный компьютер с программным обеспечением для измерения спектра нейтронного излучения webMATE [13] совместно с winTMCA32 [14] и для его расчета UMG_3.3 [15, 16].

Приведем основные характеристики источников нейтронного излучения [17].

1. Поток нейтронов в телесный угол 4π ср, $c^{-1} - B$.
2. Спектральный поток нейтронов, $c^{-1} \cdot \text{МэВ}^{-1} - B_E = \frac{dB}{dE}$, где E – энергия.
3. Плотность потока нейтронов (ППН) на расстоянии R от геометрического центра источника нейтронов, $cm^{-2} \cdot c^{-1} - \varphi = \frac{B}{4\pi \cdot R^2} \cdot e^{-\Sigma \cdot R}$, где Σ – линейный коэффициент ослабления нейтронов в воздухе.
4. Спектральная плотность потока нейтронов, $cm^{-2} \cdot c^{-1} \cdot \text{МэВ}^{-1} - \varphi_E = \frac{d\varphi}{dE}$.
5. Флюенс нейтронов, $cm^{-2} - \Phi$.
6. Спектральный флюенс нейтронов, $cm^{-2} \cdot \text{МэВ}^{-1} - \Phi_E = \frac{d\Phi}{dE}$.
7. Мощность амбиентного эквивалента дозы (МАЭД), $mkZv \cdot c^{-1} - \dot{H}^*(10)$.
8. Амбиентный эквивалент дозы (АЭД), $mkZv - H^*(10)$.

9. Коэффициент перехода от флюенса нейтронного излучения к АЭД, пЗв·см² – $h_{\Phi}^*(10)$.
 10. Мощность индивидуального эквивалента дозы (МИЭД), мкЗв·ч⁻¹ – $\dot{H}_p(10)$.
 11. Индивидуальный эквивалент дозы (ИЭД), мкЗв·ч⁻¹ – $H_p(10)$.
 12. Коэффициент перехода от флюенса нейтронного излучения к ИЭД, пЗв·см² – $h_{p\Phi}(10)$.
 13. Средняя энергия спектра нейтронного излучения, МэВ – \bar{E} .
- Спектр нейтронного излучения представляют зависимостью $B_i, B_{E_i}, \varphi_i, \varphi_{E_i}, \Phi_i$ или $\Phi_{E_i} = f(E_i)$.

В данной работе спектр представим в виде $\varphi_{E_i} \cdot E_{0i} = f(E_i)$, где $\varphi_{E_i} \cdot E_{0i} = \varphi_{Li} = \frac{\varphi_i}{u_{Li}}$, $u_{Li} = \ln \frac{E_{i+1}}{E_i}$ – логарифм; $E_{0i} = \sqrt{E_{i+1} \cdot E_i}$ – средняя энергия ячейки при логарифмическом масштабе энергии (lgE).

Как правило, для зависимости $\varphi_{Li} = f(E_i)$ выбирают логарифмический масштаб по энергии; для зависимостей $\varphi_{E_i} = f(E_i)$ и $\varphi_i = f(E_i)$ – линейный. При линейном масштабе – $E_{i0i} = 0,5 \cdot (E_{i+1} + E_i)$.

Чтобы учитывать рассеянное нейтронное излучение при измерениях, применяют теневой конус (далее – по тексту конус) (рис. 2) [18, 19].

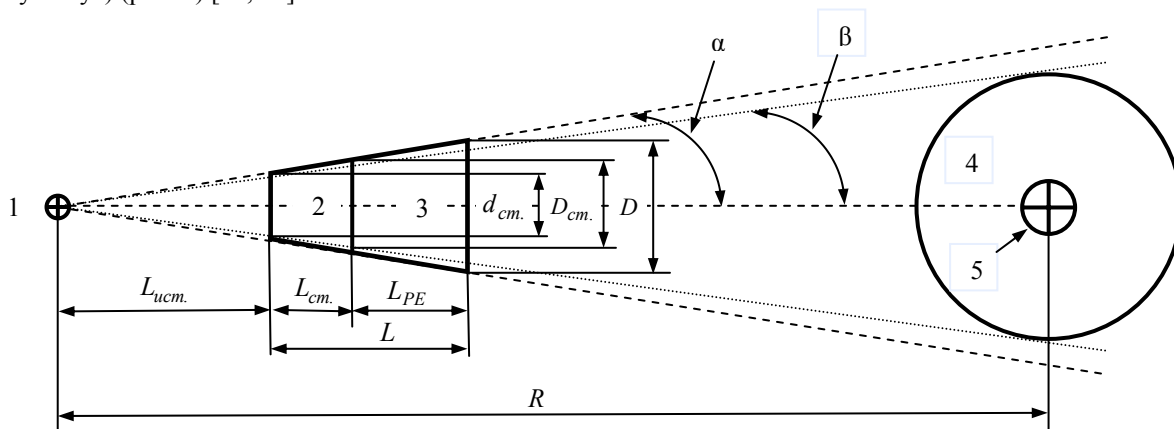


Рис. 2. Расположение источника нейтронов, теневого конуса и сферы спектрометра NEMUS.

1 – источник нейтронов; 2 – часть конуса из стали; 3 – часть конуса из полиэтилена; 4 – сфера; 5 – счетчик SP9.

Плотность потока нейтронов от источника вычислим по формуле

$$\varphi = \varphi_{\Sigma} - \varphi_K, \tag{1}$$

где φ_{Σ} – суммарная плотность потока нейтронов, включая рассеянное излучение (без конуса);

φ_K – плотность потока нейтронов за счет рассеянного излучения (с конусом).

Геометрические размеры конуса должны удовлетворять условию $\beta < \alpha < 2 \cdot \beta$ (рис. 2) [18]. Для 10 сфер и счетчика SP9 с учетом данного условия, необходимо применять три конуса, рассчитанные геометрические размеры которых приведены в таблице 1. Соответствие конусов сферам установлено расчетно-экспериментальным методом.

Таблица 1.

Геометрические размеры конусов.

Конус	Сфера	α , град	D , мм	D_{cm} , мм	L_{ucm} , мм
Конус 1	0W0iso, 3W0, 3W5, 4W0	2,121	53,6	31,4	224,1
Конус 2	4W5, 5W0, 6W0	3,768	82,4	43,0	126,0
Конус 3	7W0, 8W0, 10W0, 12W0	5,643	115,4	56,2	84,0

Примечание – $d_{cm} = 16,6$ мм; $L = 500$ мм; $L_{cm} = 200$ мм; $L_{PE} = 300$ мм; $R = 1620$ мм.

При расчете измеренного спектра нейтронного излучения применим теорему Байеса [7, 8].

Для результатов измерений существует известное априорное распределение вероятности. В измерении содержится дополнительная информация. Благодаря ее использованию можно получить апостериорное распределение вероятности:

$$P(\lambda|n_k, I) \propto P(n_k|\lambda, I) \cdot P^0(\lambda|I),$$

где $P^0(\lambda|I)$ – априорная вероятность (известный начальный спектр нейтронного излучения $\varphi_{E_i}^{DS} \cdot E_{0i} = f(E_i)$ (Default Spectrum – DS);

$P(n_k|\lambda, I)$ – функция правдоподобия, которая зависит от функций отклика (Response Function – RF) или матрицы чувствительностей $R_d = R_{ki} = f(E_i)$ (рис. 3), где $k=1, 2, \dots, m$ – количество сфер $m=11$; $i=1, 2, \dots, n$ – количество энергий; R_{ki} вычисляется при помощи компьютерного кода N-частиц Монте Карло (MCNP) [20] для моноэнергетических нейтронов; с ростом диаметра сферы энергия максимума функции отклика увеличивается.

$P(\lambda|n_k, I)$ – апостериорная вероятность (измеренный спектр нейтронного излучения $\varphi_{Li} = f(E_i)$;

I – дополнительная информация (энтропия, неопределенности при измерении, распределения случайных величин);

λ – параметр;

n_k – измеренная скорость счета импульсов;

\propto – символ пропорциональности или правдоподобия (символ Карпа).

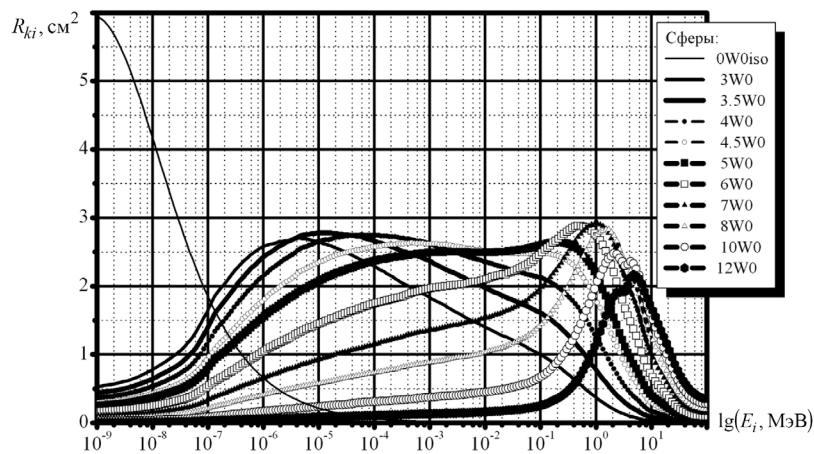


Рис. 3. Функции отклика $R_{ki} = f(E)$.

В качестве начального спектра используется нормированный спектр ($\sum_{i=1}^n \varphi_i^{DS} = 1$) PuBe источника нейтронов в диапазоне энергий $10^{-9} \leq E \leq 15$ (МэВ) [21].

В дискретном виде для k -сферы справедливо выражение (функция правдоподобия) [22]:

$$n_k + e_k = \sum_{i=1}^n R_{ki} \cdot \varphi_i, \quad (2)$$

где $\varepsilon_k = n_{kC} - n_k$;

$n_{kC} = \sum_{i=1}^n R_{ki} \cdot \varphi_i$ и $n_{kC}^{DS} = \sum_{i=1}^n R_{ki} \cdot \varphi_i^{DS}$ – рассчитанное значение скорости счета импульсов для измеренного и начального спектра k -сферы, соответственно.

Значения n_{kC} и n_k подчиняются χ^2 – распределению, применяемое для оценки дисперсий, со степенями свободы m [22] с учетом того, что значения n_k при измерении подчиняются дискретному распределению Пуассона и нормальному распределению.

Запишем дополнительные условия

$$\sum_{k=1}^m \left(\frac{\varepsilon_k}{\sigma_k} \right)^2 = \chi^2, \quad (3.1)$$

$$\sum_{k=1}^m \frac{\varepsilon_k}{\sigma_k} = 0, \quad (3.2)$$

где

$$\sigma_k = \sqrt{\sigma_{kA}^2 + \sigma_{kB}^2} \quad (3.3)$$

суммарная стандартная неопределенность при измерении n_k и расчете n_{kC} ;

$$\sigma_{kA} = \sqrt{N} \quad (3.4)$$

стандартная неопределенность типа А результатов измерений (среднее квадратическое отклонение – СКО) с учетом распределения Пуассона;

N – измеренное количество импульсов;

σ_{kB} – стандартная неопределенность типа В при измерении n_k (обусловлена неисключенной систематической погрешностью).

Уравнение (2) с учетом условия (3.1) решим методом MAXED (**M**aximum **E**ntropy **D**econvolution) – максимальной энтропии и деконволюции [5, 6].

Критерий метода MAXED – $\frac{\chi^2}{m} = 1,1$ [15, 16].

Энтропию (меру неопределенности, вероятности какого-либо события) представим в виде [22]:

$$S = -\sum_{i=1}^n \left[\varphi_i \cdot \ln \frac{\varphi_i}{\varphi_i^{DS}} + \varphi_i^{DS} - \varphi_i \right], \quad (4)$$

где первое слагаемое – энтропия Шеннона – кросс-энтропия, полученная для дискретных распределений [22]; второе слагаемое обеспечивает $S = 0$ при $\varphi_i = \varphi_i^{DS}$; третье слагаемое гарантирует, что при отсутствии каких-либо других ограничений, $\varphi_i = \varphi_i^{DS}$ при $S = 0$.

Максимальная энтропия означает, что неопределенность стремится к минимуму, следовательно, $|S| \rightarrow \min$.

Уравнение (4) с учетом (2) и (3.1) решим методом множителей Лагранжа [22].

Лагранжиан представим в виде функционала:

$$L(\varphi_i, \varepsilon_k, \lambda_k, \mu) = -\sum_{i=1}^n \left[\varphi_i \cdot \ln \frac{\varphi_i}{\varphi_i^{DS}} + \varphi_i^{DS} - \varphi_i \right] - \sum_{k=1}^m \lambda_k \cdot \left[\sum_{i=1}^n R_{ki} \cdot \varphi_i - n_k - \varepsilon_k \right] - \mu \cdot \left[\sum_{k=1}^m \left(\frac{\varepsilon_k}{\sigma_k} \right)^2 - \chi^2 \right], \quad (5)$$

где λ_k, μ – множители Лагранжа (параметры).

Для того, чтобы найти экстремум (решить задачу оптимизации) функционала $L(\varphi_i, \varepsilon_k, \lambda_k, \mu)$ относительно множителя λ_k , частные производные $\frac{\partial L}{\partial \varphi_i}$, $\frac{\partial L}{\partial \varepsilon_k}$ и $\frac{\partial L}{\partial \mu}$ должны быть равны нулю.

Вычислив частные производные и приравняв их нулю, получим

$$\begin{aligned} \ln \frac{\varphi_i}{\varphi_i^{DS}} + \sum_{k=1}^m \lambda_k \cdot R_{ki} &= 0, \\ \lambda_k - 2 \cdot \frac{\mu \cdot \varepsilon_k}{\sigma_k^2} &= 0, \\ \sum_{k=1}^m \left(\frac{\varepsilon_k}{\sigma_k} \right)^2 &= \chi^2. \end{aligned}$$

Из последних трех уравнений найдем

$$\varphi_i = \varphi_i^{DS} \cdot e^{-\sum_{k=1}^m \lambda_k \cdot R_{ki}}, \quad (6)$$

$$\varepsilon_k = \frac{\lambda_k \cdot \sigma_k^2}{2 \cdot \mu} = \frac{\lambda_k \cdot \sigma_k^2}{2} \cdot \left[\frac{4 \cdot \chi^2}{\sum_{k=1}^m (\lambda_k \cdot \sigma_k)^2} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (7)$$

$$\mu = \left[\frac{1}{4 \cdot \chi^2} \sum_{k=1}^m (\lambda_k \cdot \sigma_k)^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (8)$$

Функционал (5) представим в виде

$$L(\varphi_i, \varepsilon_k, \lambda_k, \mu) = -Z - 1,$$

где Z – потенциал функционала.

Подставив (6) – (8) в (5) при условиях, что $\sum_{i=1}^n \varphi_i^{DS} = 1$ и $Z = 0$, получим

$$Z = -\sum_{i=1}^n \varphi_i^{DS} \cdot e^{-\sum_{k=1}^m \lambda_k \cdot R_{ki}} \left[\chi^2 \cdot \sum_{k=1}^m (\lambda_k \cdot \sigma_k)^2 \right]^{\frac{1}{2}} - \sum_{k=1}^m n_k \cdot \lambda_k = 0. \quad (9)$$

Таким образом, исходная задача сведена к решению системы m уравнений (9) с m неизвестными $\lambda_1, \dots, \lambda_m$.

При расчете спектра нейтронного излучения применяем подпрограмму MAXED for Few-Channel (FC) ($m \ll n$) – MXD_FC33 из программы UMG_3.3 [15, 16], в которой, кроме уравнений (2), (6) – (9), добавлено уравнение

$$\sum_{k=1}^m \frac{n_k}{\sigma_k} - \sum_{k=1}^m \sum_{i=1}^n \frac{R_{ki} \cdot \varphi_i}{\sigma_k} = 0, \quad (10)$$

которое получим, определив ε_k из (2) и подставив в (3.2), и введен параметр γ , с учетом которого (6) преобразуем к виду

$$\varphi_i = \varphi_i^{DS} \cdot e^{-\sum_{k=1}^m R_{ki} \left(\lambda_k + \frac{\gamma}{\sigma_k} \right)}. \quad (11)$$

Алгоритм решения уравнений (2), (7) – (11), применяя матрицы и деконволюцию функций, приведен в [15, 16].

В данной работе косвенно измерены в диапазоне энергий $10^{-9} \leq E \leq 15$ (МэВ) следующие характеристики: φ , $\dot{H}^*(10)$; $\dot{H}_p(10)$; $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ и \bar{E} , которые рассчитываются по формулам:

$$\varphi = \sum_{i=1}^n \varphi_i, \quad \dot{H}(10) = \sum_{i=1}^n h_{\Phi i}(10) \cdot \varphi_i, \quad h_{\Phi}(10) = \frac{\dot{H}(10)}{\varphi}, \quad \bar{E} = \frac{\sum_{i=1}^n \varphi_i \cdot E_{10i}}{\sum_{i=1}^n \varphi_i}, \quad (12)$$

где $\varphi_i = \varphi_{Li} \cdot u_{Li}$.

Примечание: измеренные величины без конуса и с конусом рассчитываются по аналогичным формулам.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ СПЕКТРОВ PuBe и ²³⁸PuBe ИСТОЧНИКОВ НЕЙТРОНОВ

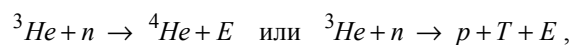
В данной работе были исследованы источники нейтронов: PuBe типа ИБН-9 ($B = 3,47 \cdot 10^6 \text{ c}^{-1}$) и ²³⁸PuBe типа ИБН-8-7 ($B = 3,34 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$).

Измерение спектра нейтронного излучения с помощью спектрометра NEMUS на сферах Боннера выполняется в три этапа:

- измерение амплитудно-импульсных спектров (АИС);
- обработка результатов измерений АИС;

- расчет спектра нейтронного излучения методом MAXED с использованием теоремы Байеса и метода множителей Лагранжа.

Реакцию взаимодействия нейтронов с атомами ³He запишем в виде



где p (¹H) – протон, T (³H) – тритий, $E = 764$ кэВ, $E_p = \frac{3}{4} \cdot E = 573$ кэВ, $E_T = \frac{1}{4} \cdot E = 191$ кэВ.

АИС источников PuBe с конусом и ²³⁸PuBe без конуса приведены на рис. 4 и рис. 5, соответственно. Нормированные по амплитуде АИС – на рис. 6 – рис. 8.

Анализ АИС нейтронного излучения, приведенных на рис. 4 – рис. 8, показывает следующее:

- спектры от всех сфер и счетчика SP9 качественно похожи; отличие в том, что в зависимости от диаметра сферы изменяется площадь под кривой (рис. 4 и рис. 5);
- максимальная чувствительность к нейтронам для источника PuBe с конусом получилась для сферы 5W0, для источника ²³⁸PuBe без конуса – для сферы 7W0, следовательно, второй спектр (рис. 5) более высокоэнергетичный (рис. 3), чем первый (рис. 4);
- нормированные по амплитуде АИС источников PuBe с конусом и ²³⁸PuBe без конуса совпадают (рис. 6 – рис. 8), следовательно, нормированный АИС нейтронного излучения постоянен и не зависит от энергии нейтронов;
- СКО измеренного количества импульсов для источника PuBe (рис. 4) больше (≈ 4 раза), чем для источника ²³⁸PuBe (рис. 5), так как значения N (рис. 4) меньше (≈ 16 раз), что соответствует распределению Пуассона (4.4).

Анализ АИС, проведенный специалистами РТВ [12], показывает, что для нейтронного излучения $\Delta E = \bar{E} - E_T = 20$ кэВ (рис. 8).

Скорость счета импульсов вычислим по формуле

$$n = \frac{N}{t_{LT} - N \cdot \tau}, \tag{13}$$

где $N = \sum_{j=65}^{600} N_j$ – суммарное количество импульсов; j – номер канала; t_{LT} – разрешающее время АЦП FAST 7070, $\tau = 16$ мкс – мертвое время счетчика SP9.

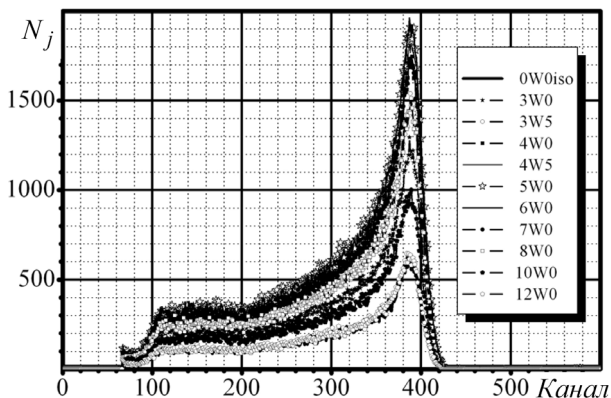


Рис. 4. АИС PuBe источника с конусом.

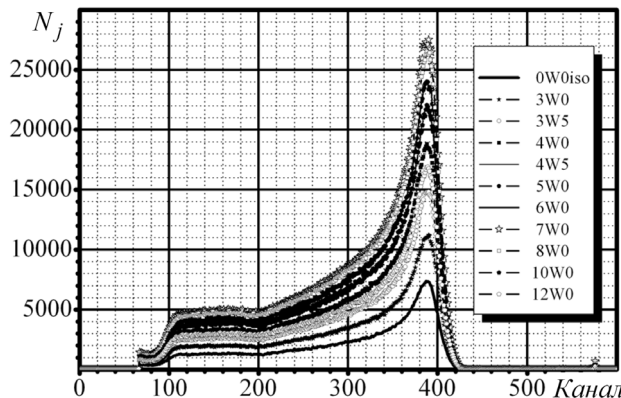


Рис. 5. АИС ²³⁸PuBe источника без конуса.

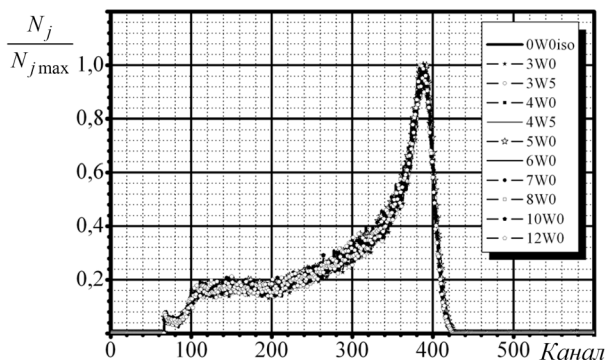


Рис. 6. Нормированные АИС PuBe источника с конусом.

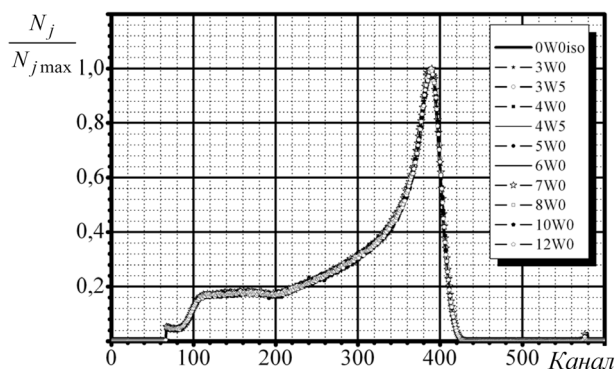


Рис. 7. Нормированные АИС ²³⁸PuBe источника без конуса.

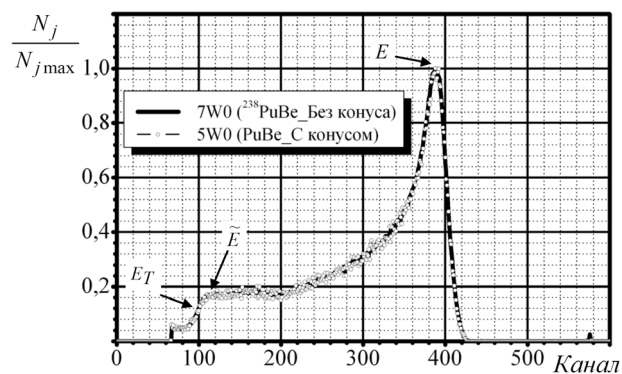


Рис. 8. Нормированные АИС источников PuBe с конусом (сфера 5W0) и ²³⁸PuBe без конуса (сфера 7W0).

$$E = 764 \text{ кэВ}, 388 \text{ канал};$$

$$E_T = 191 \text{ кэВ}, 97 \text{ канал} - \text{точка перегиба};$$

$$\tilde{E} = 211 \text{ кэВ}, 117 \text{ канал};$$

$$\Delta E = \tilde{E} - E_T = 20 \text{ кэВ}.$$

Скорость счета импульсов от источника нейтронов без учета рассеянного излучения согласно (1) вычислим по формуле

$$n_k = n_{\Sigma k} - n_{Kk}, \tag{14}$$

где n – по формуле (13).

Стандартную неопределенность типа А определим как результат косвенного измерения

$$\sigma_{kA} = \sqrt{(\sigma_{n_{\Sigma k}})^2 + (\sigma_{n_{Kk}})^2}. \tag{15}$$

Стандартные неопределенности $\sigma_{n_{\Sigma k}}$ и $\sigma_{n_{Kk}}$ определим по формуле

$$(\sigma_{n_q})^2 = \left[\frac{t_{LT}}{(t_{LT} - N_q \cdot \tau)^2} \right]^2 \cdot (\sigma_{N_q})^2 + \left(\frac{n_q}{t_{LT} - N_q \cdot \tau} \right)^2 \cdot (\sigma_{t_{LT}})^2 + n_q^2 \cdot (\sigma_\tau)^2,$$

где q – индекс, $q = \Sigma k$ и $q = Kk$.

Так как $N_q \cdot \tau \ll t_{LT}$, $\frac{n_q}{t_{LT}} \cdot \sigma_{t_{LT}} \ll \frac{\sigma_{N_q}}{t_{LT}}$ и $\sigma_\tau = 0$ ($\tau = \text{Const}$), то $\sigma_{n_q} = \frac{1}{t_{LT}} \cdot \sigma_{N_q}$. Следовательно, при $t_{1LT} = t_{2LT} = t_{LT}$ (15) преобразуем к виду

$$\sigma_{kA} = \frac{1}{t_{LT}} \cdot \sqrt{(\sigma_{N_{\Sigma k}})^2 + (\sigma_{N_{Kk}})^2},$$

где $\sigma_{N_{\Sigma k}}$ и $\sigma_{N_{Kk}}$ вычислим по формуле (3.4).

При измерении спектров считаем, что относительная стандартная неопределенность типа В равна $\sigma_{\delta_{KB}} = 0,05$.

Суммарную стандартную неопределенность σ_k вычислим по формуле (3.3).

Стандартная неопределенность типа А согласно распределению Пуассона определяется временем измерения количества импульсов.

Стандартная неопределенность типа В определяется погрешностью при расчете R_{ki} [20]; правильностью расчета геометрических размеров конусов, качеством их изготовления, чистотой материала, из которого они изготовлены; размещением сферы относительно источника нейтронов; анизотропией счетчика SP9; нестабильностью AIOSAP-02 и АЦП FAST 7070.

Таблица 2.

Результаты измерений и расчета для PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов

№ п/п	Сфера	Источник				Без конуса				С конусом			
		n_k, c^{-1}	$\varepsilon_k, \text{c}^{-1}$	σ_k, c^{-1}	$\lambda_k, \text{см}^{-2}$	$n_{\Sigma k}, \text{c}^{-1}$	$\varepsilon_k, \text{c}^{-1}$	σ_k, c^{-1}	$\lambda_k, \text{см}^{-2}$	n_{Kk}, c^{-1}	$\varepsilon_k, \text{c}^{-1}$	σ_k, c^{-1}	$\lambda_k, \text{см}^{-2}$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
1а.	0W0iso	0,003	–	–	–	0,332	-0,003	0,017	-9,83(-2)	0,569	-0,011	0,029	-2,20(-1)
1б.		0,002	–	–	–	0,320	-0,002	0,016	-8,60(-2)	0,565	-0,011	0,028	-2,13(-1)
2а.	3W0	0,208	0,032	0,012	3,36(-1)	0,744	0,021	0,037	1,37(-1)	1,134	0,049	0,057	2,39(-1)
2б.		0,208	0,027	0,011	3,99(-1)	0,728	0,022	0,036	1,42(-1)	1,134	0,054	0,057	2,60(-1)
3а.	3W5	0,405	0,023	0,022	7,65(-2)	0,981	-0,028	0,049	-1,05(-1)	1,401	-0,017	0,070	-5,29(-2)
3б.		0,408	0,016	0,021	6,25(-2)	0,967	-0,029	0,048	-1,10(-1)	1,407	-0,018	0,070	-5,75(-2)
4а.	4W0	0,681	-0,005	0,035	-7,02(-3)	1,226	-0,077	0,061	-1,82(-1)	1,631	-0,083	0,082	-1,94(-1)
4б.		0,669	0,005	0,034	7,19(-3)	1,218	-0,082	0,061	-1,94(-1)	1,657	-0,105	0,083	-2,38(-1)
5а.	4W5	1,001	-0,013	0,051	-7,73(-3)	1,428	-0,070	0,071	-1,22(-1)	1,754	-0,080	0,088	-1,62(-1)
5б.		0,993	-0,006	0,050	-4,42(-3)	1,423	-0,074	0,071	-1,29(-1)	1,774	-0,097	0,089	-1,93(-1)
6а.	5W0	1,319	-0,093	0,067	-3,34(-2)	1,610	-0,112	0,081	-1,54(-1)	1,841	-0,113	0,092	-2,08(-1)
6б.		1,306	-0,079	0,065	-3,02(-2)	1,581	-0,090	0,079	-1,27(-1)	1,820	-0,089	0,091	-1,68(-1)
7а.	6W0	1,795	-0,073	0,090	-1,45(-2)	1,783	-0,049	0,089	-5,34(-2)	1,805	-0,069	0,090	-1,30(-1)
7б.		1,852	-0,126	0,093	-2,45(-2)	1,790	-0,055	0,090	-6,13(-2)	1,779	-0,043	0,089	-8,32(-2)
8а.	7W0	2,129	-0,060	0,107	-8,41(-3)	1,819	0,007	0,091	8,59(-3)	1,631	-0,030	0,082	-6,93(-2)
8б.		2,127	-0,053	0,106	-7,58(-3)	1,825	0,010	0,091	9,80(-3)	1,634	-0,033	0,082	-7,63(-2)
9а.	8W0	2,266	-0,041	0,114	-5,16(-3)	1,731	0,063	0,087	7,55(-2)	1,382	0,021	0,069	6,76(-2)
9б.		2,257	-0,026	0,113	-3,24(-3)	1,742	0,066	0,087	7,54(-2)	1,389	0,013	0,069	4,14(-2)
10а.	10W0	2,150	-0,004	0,108	-6,32(-4)	1,414	0,127	0,071	2,26(-1)	0,919	0,088	0,046	6,52(-1)
10б.		2,132	0,020	0,107	2,79(-3)	1,425	0,136	0,071	2,33(-1)	0,921	0,084	0,046	6,25(-1)
11а.	12W0	1,786	-0,005	0,090	-9,44(-4)	1,077	0,094	0,054	2,87(-1)	0,594	0,054	0,030	9,54(-1)
11б.		1,807	-0,021	0,090	-4,10(-3)	1,101	0,089	0,055	2,57(-1)	0,592	0,055	0,030	9,89(-1)

Примечания
1 а – PuBe, б – ²³⁸PuBe.
2 В скобках указана степень экспоненциальной записи числа.

Нормированные результаты измерений $(\sum_{i=1}^n \varphi_i, \sum_{i=1}^n \varphi_{\Sigma i}, \sum_{i=1}^n \varphi_{Ki} = 1 \text{ см}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}) - n_k$ для PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов и рассчитанные значения $\varepsilon_k, \sigma_k, \lambda_k, \mu, \gamma, \frac{\chi^2}{m}$ и $\sum_{k=1}^m \frac{\varepsilon_k}{\sigma_k}$ приведены в таблице 2 и

таблице 3; зависимости $n_{\Sigma k}, n_{Kk}, n_k = f(d)$ – на рис. 9–11 [23]; зависимости $h_{\Phi}^*(10)_i = f(E_i)$ и $h_{p\Phi}(10)_i = f(E_i)$ – на рис. 12; спектры PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов – на рис. 13 (ППН) [23] и рис. 14 (МАЭД).

Таблица 3.

Значения $\mu, \gamma, \frac{\chi^2}{m}$ и $\sum_{k=1}^m \frac{\epsilon_k}{\sigma_k}$.

Вид излучения	Источник				Без конуса				С конусом			
	$\mu, 10^{-4} \text{ см}^{-2}$	$\gamma, 10^{-4} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	$\frac{\chi^2}{m}$	$\sum_{k=1}^m \frac{\epsilon_k}{\sigma_k}$	$\mu, 10^{-3} \text{ см}^{-2}$	$\gamma, 10^{-3} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	$\frac{\chi^2}{m}$	$\sum_{k=1}^m \frac{\epsilon_k}{\sigma_k}$	$\mu, 10^{-3} \text{ см}^{-2}$	$\gamma, 10^{-3} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	$\frac{\chi^2}{m}$	$\sum_{k=1}^m \frac{\epsilon_k}{\sigma_k}$
PuBe	7,97	-3,72	1,103	0,053	4,46	-2,09	1,110	-0,009	7,75	-7,88	1,103	-0,018
²³⁸ PuBe	8,22	-5,32	1,104	0,071	4,38	-1,96	1,103	0,118	7,78	-7,87	1,102	-0,028

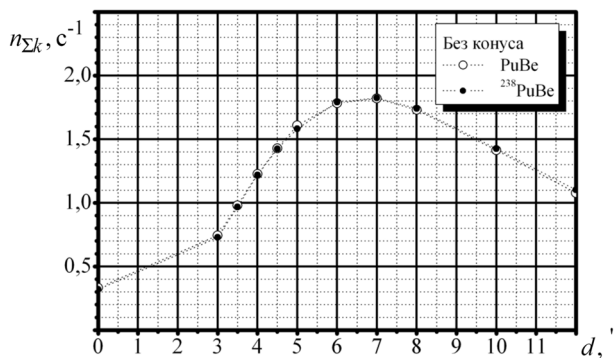


Рис. 9. Зависимости $n_{\Sigma k} = f(d)$ без конуса

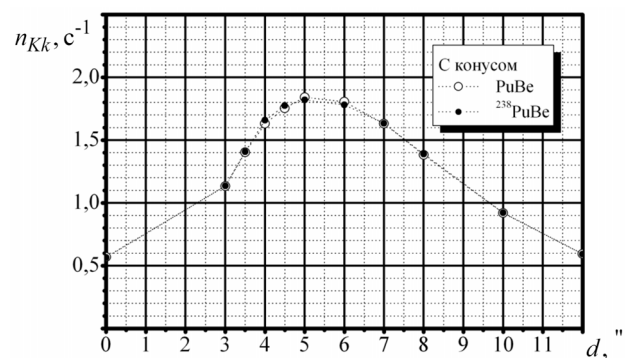


Рис. 10. Зависимости $n_{Kk} = f(d)$ с конусом

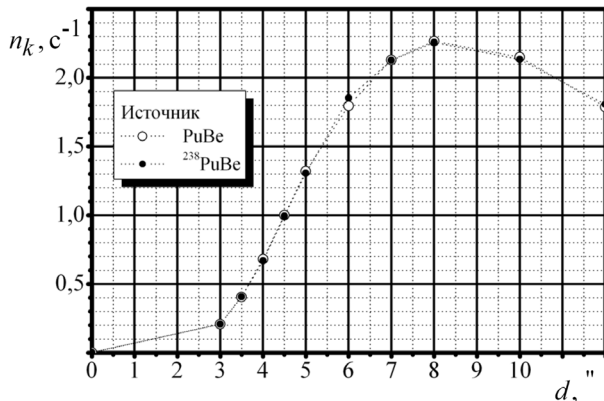


Рис. 11. Зависимости $n_k = f(d)$ PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов

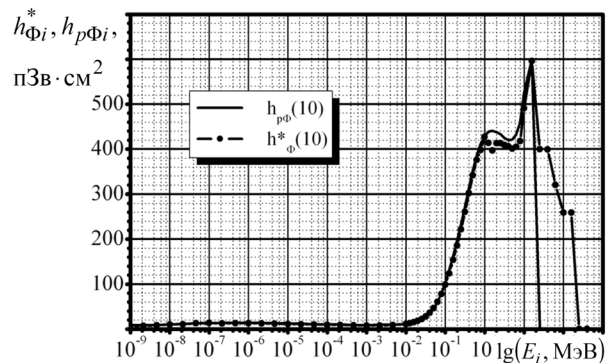


Рис. 12. Зависимости $h_{\Phi}^*(10)_i = f(E_i)$ и $h_{p\Phi}(10)_i = f(E_i)$

Анализ данных, приведенных в таблице 2, зависимостей $n_{\Sigma k}, n_{Kk}, n_k = f(d)$ (рис. 9 – 11) и спектров (рис. 13, 14), показывает следующее:

- зависимости $n_k = f(d)$ и спектры PuBe и ²³⁸PuBe источников нейтронов (при заданном начальном спектре) совпадают (рис. 13 и рис. 14), можно сделать обобщающий вывод: если зависимости скорости счета импульсов от диаметра сферы совпадают, то совпадают и спектры нейтронного излучения;

- спектры нейтронного излучения МАЭД и МИЭД в диапазоне энергий $10^0 \leq E \leq 15$ (МэВ) качественно совпадают, так как качественно совпадают зависимости $h_{\Phi}^*(10)_i = f(E_i)$ и $h_{p\Phi}(10)_i = f(E_i)$ (рис. 12);

- распределение нейтронов по энергиям для спектров МАЭД и МИЭД без учета рассеянного излучения, без конуса и с конусом практически не изменяется (рис. 14), в отличие от спектров ППН (рис. 13), что связано с зависимостями $h_{\Phi}^*(10)_i = f(E_i)$ и $h_{p\Phi}(10)_i = f(E_i)$ (рис. 12);

- для счетчика SP9 без сферы (0W0iso) $n_{SP9} = n_1 \ll (n_2, \dots, n_{11})$; это подтверждает то, что чувствительность

счетчика SP9 к нейтронам с $E > 1$ кэВ (рис. 3) стремится к нулю;

- максимум чувствительности PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов без учета рассеянного излучения соответствует сфере 8W0, что совпадает с данными, приведенными в [21];

- максимум чувствительности PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов без конуса соответствует сфере 7W0, что совпадает с данными, приведенными на рис. 5;

- максимум чувствительности PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов с конусом соответствует сфере 5W0, что совпадает с данными, приведенными на рис. 4.

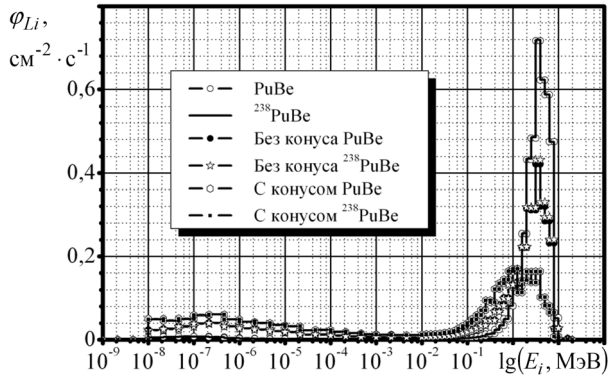


Рис. 13. Спектры PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов (ППН)

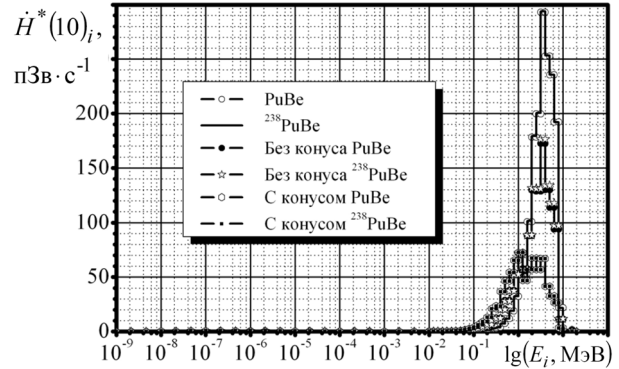


Рис. 14. Спектры PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов (МАЭД)

Результаты измерений ППН, МАЭД и МИЭД приведены в таблице 4; $h_{\Phi}^*(10)$, $h_{p\Phi}(10)$ и \bar{E} – в таблицах 5, 6 и 7.

Таблица 4.

Результаты измерений ППН, МАЭД и МИЭД.

Измеренная характеристика	Источник		Без конуса		С конусом	
	X	$U_{\delta}(X)$, %	X_{Σ}	$U_{\delta}(X_{\Sigma})$, %	X_K	$U_{\delta}(X_K)$, %
PuBe ; φ , $\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$; $\dot{H}^*(10)$, $\dot{H}_p(10)$, $\text{мкЗв}\cdot\text{ч}^{-1}$						
φ	10,8	3,6	26,3	3,2	15,3	3,2
$\dot{H}^*(10)$	15,0	4,0	26,3	4,6	10,0	5,4
$\dot{H}_p(10)$	15,7	4,0	27,5	4,6	10,5	5,4
$^{238}\text{PuBe}$; φ , $\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$; $\dot{H}^*(10)$, $\dot{H}_p(10)$, $\text{мкЗв}\cdot\text{ч}^{-1}$						
φ	96,6	3,6	227	3,2	128	3,2
$\dot{H}^*(10)$	135	4,0	230	4,6	83,9	5,4
$\dot{H}_p(10)$	141	4,0	240	4,6	87,1	5,4

Примечание – $U_{\delta}(X) = k \cdot u_{\delta}(X)$ – расширенная относительная неопределенность при доверительной вероятности $P = 0,95$ ($k = 2$ – коэффициент охвата); $u_{\delta}(X)$ – рассчитанные значения относительных суммарных стандартных неопределенностей.

Таблица 5.

Результаты измерений $h_{\Phi}^*(10)$, $\text{пЗв}\cdot\text{см}^2$.

Вид источника	Источник				Без конуса		С конусом	
	$h_{\Phi}^*(10)$	$U_{\delta}(h_{\Phi}^*)$, %	$h_{\Phi}^*(10)_0$	$\delta(h_{\Phi}^*)$, %	$h_{\Phi}^*(10)_{\Sigma}$	$U_{\delta}(h_{\Phi}^*)_{\Sigma}$, %	$h_{\Phi}^*(10)_K$	$U_{\delta}(h_{\Phi}^*)_K$, %
PuBe	387	4,0	371 ¹	4,3	278	4,6	182	5,4
$^{238}\text{PuBe}$	388	4,0		4,6	282	4,6	182	5,4

Таблица 6.

Результаты измерений $h_{p\Phi}(10)$, пЗв·см².

Вид источника	Источник				Без конуса		С конусом	
	$h_{p\Phi}(10)$	$U_{\delta}(h_{p\Phi})$, %	$h_{p\Phi 0}$	$\delta(h_{p\Phi})$, %	$h_{p\Phi}(10)_{\Sigma}$	$U_{\delta}(h_{p\Phi})_{\Sigma}$, %	$h_{p\Phi}(10)_K$	$U_{\delta}(h_{p\Phi})_K$, %
<i>PuBe</i>	405	4,0	388 ¹	4,4	290	4,6	190	5,4
²³⁸ <i>PuBe</i>	406	4,0		4,6	294	4,6	189	5,4

Таблица 7.

Результаты измерений \bar{E} , МэВ

Вид источника	Источник				Без конуса		С конусом	
	\bar{E}	$U_{\delta}(\bar{E})$, %	\bar{E}_0	$\delta\bar{E}$, %	\bar{E}_{Σ}	$U_{\delta}(\bar{E})_{\Sigma}$, %	\bar{E}_K	$U_{\delta}(\bar{E})_K$, %
<i>PuBe</i>	3,648	5,4	3,504 ¹	4,1	2,112	8,8	0,900	13,4
²³⁸ <i>PuBe</i>	3,655	5,4		4,3	2,161	8,6	0,897	13,4

Примечания к таблицам 5, 6 и 7:

1) $\delta(X)$ – отклонение от X_0 ;2) ¹ – значения получены расчетным путем по данным таблицы 4.XI [21].

Анализ данных, приведенных в таблицах 4, 5, 6 и 7 с учетом формул (12), показывает следующее:

- все измерения – косвенные, значения φ_i коррелированы, поэтому при расчете неопределенностей при измерении φ , $\dot{H}^*(10)$; $\dot{H}_p(10)$; $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ и \bar{E} учитывают коэффициенты корреляции [15, 16];

- коэффициенты $h_{\Phi}^*(10)$ и $h_{p\Phi}(10)$ можно рассчитать при условии, что $\sum_{i=1}^n \varphi_i = 1 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$

($h_{\Phi}(10) = \sum_{i=1}^n h_{\Phi}(10)_i \cdot \varphi_i$), поэтому согласно (12) неопределенности при расчете $\dot{H}(10)$ и $h_{\Phi}(10)$ равны;

- минимальные неопределенности получены при измерении φ_{Σ} и φ_K , потому что эти измерения – косвенные без применения формулы (14), измерения φ – косвенные с применением (14): $U_{\delta}(\varphi_K) \approx U_{\delta}(\varphi_{\Sigma}) < U_{\delta}(\varphi)$;

- максимальные неопределенности получены при измерении \bar{E} с конусом, потому что согласно (12) \bar{E} рассчитывается по более сложной формуле, чем другие характеристики;

- $U_{\delta}(X_K) > U_{\delta}(X_{\Sigma}) > U_{\delta}(X)$ при измерении $\dot{H}^*(10)$; $\dot{H}_p(10)$; $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ и \bar{E} , потому что спектры без конуса и с конусом (рис. 13) более широкополосные (больше составляющих, не равных нулю) по сравнению со спектром источника;

- с ростом \bar{E} увеличиваются значения $h_{\Phi}^*(10)$ и $h_{p\Phi}(10)$;

- результаты измерений $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ и \bar{E} без учета рассеянного излучения согласуются со значениями, полученными расчетным путем по данным таблицы 4.XI [21], в пределах расширенных неопределенностей при $P = 0,95$.

Оценка расширенной относительной неопределенности при $P = 0,95$, не превышает, при измерении:

- φ – ± 4 %;

- $\dot{H}^*(10)$; $\dot{H}_p(10)$; $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ без учета рассеянного излучения – ± 4 %;

- $\dot{H}^*(10)$; $\dot{H}_p(10)$; $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ без конуса – ± 5 %;

- $\dot{H}^*(10)$; $\dot{H}_p(10)$; $h_{\Phi}^*(10)$; $h_{p\Phi}(10)$ с конусом – ± 6 %;

- \bar{E} без учета рассеянного излучения – ± 6 %;

- \bar{E} без конуса – ± 9 %;

- \bar{E} с конусом – ± 14 %.

ВЫВОДЫ

1. Нормированный амплитудно-импульсный спектр нейтронного излучения постоянен и не зависит от энергии нейтронов.

2. Если зависимости скорости счета импульсов от диаметра сферы совпадают, то совпадают и спектры нейтронного излучения.

3. Оценка расширенной относительной неопределенности при доверительной вероятности 0,95, не превышает, при измерении:

- ППН – $\pm 4\%$;

- МАЭД, МИЭД, $h_{\Phi}^*(10)$ и $h_{p\Phi}(10)$ без учета рассеянного излучения – $\pm 4\%$;

- МАЭД, МИЭД, $h_{\Phi}^*(10)$ и $h_{p\Phi}(10)$ без конуса – $\pm 5\%$;

- МАЭД, МИЭД, $h_{\Phi}^*(10)$ и $h_{p\Phi}(10)$ с конусом – $\pm 6\%$;

- средней энергии без учета рассеянного излучения – $\pm 6\%$;

- средней энергии без конуса – $\pm 9\%$;

- средней энергии с конусом – $\pm 14\%$.

4. Нормированные спектры PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов в диапазоне энергий от 10^{-9} МэВ до 15 МэВ при заданном начальном спектре совпадают в пределах расширенной неопределенности при измерении ППН, МАЭД и МИЭД.

5. Распределение нейтронов по энергиям для спектров МАЭД и МИЭД PuBe и $^{238}\text{PuBe}$ источников нейтронов без учета рассеянного излучения, без конуса и с конусом практически не изменяется, в отличие от спектров ППН.

В заключение авторы статьи хотят выразить свою признательность и благодарность сотрудникам Physikalisch-Technische Bundesanstalt (Braunschweig, Germany): Dr. Burkhard Wiegel, Dr. Marcel Reginatto, Dr. Oleksiy Burda, Mr. Stefan Dette и Mr. André Lücke и сотруднику фирмы Centronic Ltd (Croydon, United Kingdom) Dr. Bashwar Baral за очень хорошо организованную и проведенную учебу с представителями ННЦ «Институт метрологии» в рамках проекта Комиссии Европейских Сообществ «Поставка оборудования для предоставления метрологических услуг и услуг по проведению испытания» по изучению принципа работы нейтронного спектрометра NEMUS на сферах Боннера, программного обеспечения, необходимого для расчета и построения спектров источников нейтронного излучения, и организацию практической работы на спектрометре NEMUS на сферах Боннера.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bramblett R.L., Ewing, R. J., Bonner, T.W. A New Type of Neutron Spectrometer // Nuclear Instruments and Methods. – 1960. – No. 9. – P. 1-12.
2. Wiegel B., Alevra A.V. NEMUS – the PTB Neutron Multisphere Spectrometer: Bonner sphere and more // Nuclear Instruments and Method in Physics Research. Section A. – 2002. – Vol. 476. – P. 36-41.
3. Alevra A.V., Thomas D.J. Neutron spectrometry in mixed fields: multisphere spectrometers // Radiation Protection Dosimetry. – 2003. – Vol. 107. – No. 1 – 3. – P. 37-72.
4. Cruzate, J.A., Carelli, J.L., Gregori, B.N. Bonner Sphere Spectrometer / Proceedings of Workshop on «Uncertainty Assessment in Computational Dosimetry: a Comparison of Approaches». – Bologna. – 2007. – P. 45-52.
5. Reginatto M., Goldhagen P. MAXED, A computer code for maximum entropy deconvolution of multisphere neutron spectrometer data // Health Physics. – 1999. – Vol. 77. – No. 5. – P. 579-583.
6. Reginatto M., Goldhagen P., Neumann S. Spectrum unfolding, sensitivity analysis and propagation of uncertainties with the maximum entropy deconvolution code MAXED // Nuclear Instruments and Method in Physics Research. Section A. – 2002. – Vol. 476. – P. 242-246.
7. Reginatto M. Unfolding techniques for neutron spectrometry / Preprint (24.01.2008). Submitted to the Proceedings of Workshop on «Uncertainty Assessment in Computational Dosimetry: a Comparison of Approaches». – Bologna. – 2007. – 8 p.
8. Reginatto M. What can we learn about the spectrum of high-energy stray neutron fields from Bonner sphere measurements? // Radiation Measurements. – 2009. – Vol. 44. – P. 692-699.
9. Vega-Carrillo H.R., Torres-Muhech C. Low energy neutrons from a $^{239}\text{PuBe}$ isotopic neutron source inserted inmoderating media // Revista Mexicana de Fisica. – 2002. – Vol. 48. – No. 5. – P. 405-412.
10. Dann C. Ward. Impact of Switching To The ICRP-74 Neutron Flux-To-Dose Equivalent Rate Conversion Factors At The Sandia National Laboratory Building 818 Neutron Source Range / SANDIA REPORT. SAND2009-1144. – Albuquerque, New Mexico 87185 and Livermore, California 94550. – 2009. – 52 p.
11. Vega-Carrillo H.R., Hernandez-Davila V.M., Rivera-Montalvo T., Sanchez A. Characterization of a $^{239}\text{PuBe}$ Isotopic Neutron Source / Proceedings of the XIII International Symposium XXIII National Congress on Solid State Dosimetry. – Mexico. – 2012. – P. 64-69.
12. Manual Bonner Sphere Spectrometer of the National Scientific Centre «Institute of Metrology». – Braunschweig. – 2010. – 26 p.
13. WebMATE. User Manual. ICx Technologies GmbH. WebMATE/en/1.4(3967). – Solingen. – 2009. – 16 p.
14. WinTMCA32. User Manua. ICx Technologies GmbH. WebMATE/en/1.2(3366). – Solingen. – 2009. – 134 p.
15. Reginatto M., Wiegel B., Zimbal A., UMG 3.3 – Unfolding with MAXED and GRAVEL, available from the NEA Data Bank // <http://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/nea-1665>, <https://rsic.e.ornl.gov/codes/psr/psr5/psr-529.html>.

16. Reginatto M. The «few-channel» unfolding programs in the UMG package: MXD_FC33, GRV_FC33 and IQU_FC33. UMG package, version 3.3. PTB. – Braunschweig. – 2004. – 51 p.
17. ISO 8529-1:2001. Reference neutron radiations. Part 1. Characteristics and methods of production. – Geneva. – 2001. – 24 p.
18. ISO 8529-2:2000. Reference neutron radiations. Part 2. Calibration fundamentals of radiation protection devices related to the basic quantities characterizing the radiation field. – Geneva. – 2000. – 31 p.
19. Khabaz R., Hakimabad H.M. Determination of $^{241}\text{Am-Be}$ Spectra using Bonner Sphere Spectrometer by Applying Shadow Cone Technique in Calibration // *Journal of Applied Sciences*. – 2011. – Vol. 11. – No. 15. – P. 2849-2854.
20. Wiegel B., Alevra A.V., Siebert B.R.L. Calculations of the Response Functions of Bonner Spheres with a Spherical ^3He Proportional Counter. Using a Realistic Detector Model / PTB-Bericht N-21. – Braunschweig. – 1994. – 84 p.
21. Compendium of Neutron Spectra and Detector Responses for Radiation Protection Purposes. Supplement to Technical Reports Series No. 318 / Technical Reports Series No. 403. IAEA. – Vienna. – 2001. – 337 p.
22. Reginatto M., Goldhagen P. MAXED. A computer code for the deconvolution of multisphere neutron spectrometer data using the maximum entropy method // *Environmental Measurements Laboratory. EML-595*. U.S. Department of Energy. – New York. – 1998. – 40 p.
23. Ivanskyi V.B., Letuchyi A.N., Orobinskyi A.N., Siroko H.V. Researches of the spectrum of PuBe and $^{238}\text{PuBe}$ neutron sources using Bonner sphere spectrometer with a ^3He -counter // *Proceedings of the International scientific-technical conference «METROLOGY-2017»*. – Minsk. – 2017. – P. 136 – 141 (in Russian).

PACS: 81.40.Lm, 81.40.Ef, *43.40.Le

STUDY OF PLASTIC DEFORMATION OF CADMIUM

I.I. Papirov¹⁾, P.I. Stoev^{1,2)}, G.P. Kovtun^{1,2)}, A.P. Shcherban¹⁾, D.A. Solopikhin¹⁾,
T.Yr. Rudycheva¹⁾¹⁾National Scientific Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"
1, Akademicheskaya st., 61108, Kharkov, Ukraine, tel/fax 057-335-60-27
E-mail: garin@kipt.kharkov.ua²⁾V.N. Karazin Kharkov National University
61022, Kharkov, Svoboda square, 4, tel/fax 057-335-28-33
Received April 12, 2017

The paper presents the results of a study for compression deformation of cadmium samples of different purities at room temperature. The analysis of hardening and recovery processes that influence the formation of the structure in the material is carried out. Conditions for starting work and features of dynamic recovery and dynamic recrystallization in samples of technical and distilled cadmium are considered, which result in softening of the material and grain growth in it. The differences in the course of these processes are determined depending on the purity of the initial samples of cadmium. On the basis of the analysis of changes in acoustic parameters (AE activity, amplitude distribution of signals in the AE spectrum, the contribution of signals of different amplitudes to the integrated spectrum of AE), during deformation, we make assumptions about deformation mechanisms that occur at different stages of cadmium deformation. It is shown that the course of dynamic recovery processes during deformation is much more complicated than static recovery ones after deformation and subsequent annealing.

KEY WORDS: cadmium, deformation mechanisms, dynamic return, dynamic recrystallization, acoustic emission, amplitude distribution of AE signals

ВИВЧЕННЯ ПЛАСТИЧНОЇ ДЕФОРМАЦІЇ КАДМІЮ

I.I. Папіров¹⁾, П.І. Стоєв^{1,2)}, Г.П. Ковтун^{1,2)}, О.П. Щербань¹⁾, Д.О. Солопихін¹⁾, Т.Ю. Рудичева¹⁾¹⁾Національний Науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»
вул. Академічна 1, м. Харків 61108, Україна, тел/факс 057-335-60-27²⁾Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
61022, м. Харків, майдан Свободи, 4, тел/факс 057-335-28-33

У роботі наведені результати дослідження зразків кадмію, які були деформовані стиском при кімнатній температурі. Проведено аналіз зміцнюючих і відновлюючих процесів, які впливають на формування структури в матеріалі. Розглянуто умови початку роботи і особливості динамічного відновлення і динамічної рекристалізації в зразках технічного та дистильованого кадмію, результатом яких є знеміцнення матеріалу і зростання в ньому зерна. Встановлено відмінності протікання цих процесів залежно від чистоти вихідних зразків кадмію. На основі аналізу зміни у поведінці акустичних параметрів (активності АЕ, амплітудного розподілу сигналів в спектрі АЕ, вкладу сигналів різної амплітуди в інтегральний спектр АЕ) при деформації матеріалу зроблені припущення про механізми деформації, які протікають на різних стадіях деформування кадмію. Показано, що перебіг динамічних зворотних процесів при деформації проходять значно складніше, ніж статичні після деформування і наступних відпалів.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: кадмій, механізми деформації, динамічне відновлення, динамічна рекристалізація, акустична емісія, амплітудний розподіл сигналів АЕ

ИЗУЧЕНИЕ ПЛАСТИЧЕСКОЙ ДЕФОРМАЦИИ КАДМИЯ

И.И. Папи́ров¹⁾, П.И. Стоев^{1,2)}, Г.П. Ковтун^{1,2)}, А.П. Щербань¹⁾, Д.А. Солопихин¹⁾, Т.Ю. Рудичева¹⁾¹⁾Национальный Научный Центр "Харьковский физико-технический институт"
ул. Академическая 1, г. Харьков, 61108, Украина, тел/факс 057-335-60-27²⁾Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина, 61022
м. Харьков, пл. Свободы, 4, тел/факс 057-335-28-33

В работе приведены результаты исследования деформирования сжатием образцов кадмия различной чистоты при комнатной температуре. Проведен анализ упрочняющих и восстанавливающих процессов, которые влияют на формирование структуры в материале. Рассмотрены условия начала работы и особенности динамического возврата и динамической рекристаллизации в образцах технического и дистиллированного кадмия, результатом которых является разупрочнение материала и рост зерна в нем. Установлены различия протекания этих процессов в зависимости от чистоты исходных образцов кадмия. На основе анализа изменения акустических параметров (активности АЭ, амплитудного распределения сигналов в спектре АЭ, вклада сигналов различной амплитуды в интегральный спектр АЭ) сделаны предположения о механизмах деформации, которые протекают на различных стадиях деформирования кадмия. Показано, что протекание динамических возвратных процессов при деформировании проходят значительно сложнее, чем статические после деформирования и последующих отжигов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: кадмий, механизмы деформации, динамический возврат, динамическая рекристаллизация, акустическая эмиссия, амплитудное распределение сигналов АЭ

Кадмий широко применяется в различных отраслях промышленности. Основная часть промышленного потребления кадмия приходится на кадмиевые защитные покрытия, предохраняющие металлы от коррозии, и

© Papirov I.I., Stoev P.I., Kovtun G.P., Shcherban A.P., Solopikhin D.A., Rudycheva T.Yr., 2017

на производство сплавов. Сплавы кадмия обладают достаточной пластичностью и хорошо поддаются механической обработке. Сплавы кадмия с небольшими добавками никеля, меди и серебра используют для изготовления подшипников мощных судовых, авиационных и автомобильных двигателей и аккумуляторов. Кроме того кадмий используется в ювелирном деле и стоматологии.

Благодаря высокому сечению захвата тепловых нейтронов, чистый кадмий используется для изготовления регулирующих и аварийных стержней ядерных реакторов на медленных нейтронах.

Несмотря на достаточно широкое использование кадмия особенности процессов его пластической деформации и рекристаллизации изучены недостаточно. Вследствие низкой температуры его плавления ($320,9^{\circ}\text{C}$), они имеют ряд интересных особенностей. В справочной литературе приведены механические характеристики кадмия (предел прочности при растяжении $45 - 64 \text{ мН/м}^2$, относительное удлинение $15 - 20\%$, твердость по Бринеллю 160 мН/м^2). Данные по изучению влияния структурных факторов на свойства кадмия практически отсутствуют.

Для исследования кинетических закономерностей процессов пластической деформации и разрушения конструкционных материалов широко используют структурно чувствительный метод акустической эмиссии. Поэтому целью данной работы является изучение особенностей пластической деформации и акустических параметров в процессе деформации кадмия различной чистоты.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Материалом для исследований служил кадмий марки ЧДА и кадмий высокой чистоты ($> 99,9994 \text{ мас.}\%$), полученный комплексным методом рафинирования, включающим прогрев, фильтрацию и дистилляцию в вакууме [1]. Состав исследованных сортов кадмия приведен в таблице.

Таблица

Примесный состав исходного кадмия и кадмия высокой чистоты, полученного комплексным методом рафинирования

Элемент	Содержание примесей, ppm*	
	исходный кадмий	рафинированный кадмий
Mg	30	$< 0,5$
Al	1,5	$< 0,1$
K	8,3	$< 0,7$
Ca	14	$< 0,5$
Cr	0,2	0,1
Mn	0,2	0,1
Fe	4	0,2
Co	0,3	$< 0,03$
Ni	30	0,3
Cu	4,7	0,3
Zn	12	$< 0,5$
Ag	0,2	0,03
Pb	100	3
Cd, %	$\sim 99,98$	$> 99,9994$

* содержание примесей в кадмии определяли методом лазерной масс-спектрометрии.

Из технического и дистиллированного кадмия получали слитки диаметром 12 мм, которые подвергали волочению при комнатной температуре ($T = 300 \text{ K}$) до диаметра 5 мм. Из полученной проволоки с помощью электроэрозионной резки вырезали образцы длиной 6 мм и подвергали их химическому травлению.

Деформирование сжатием образцов кадмия проводили на универсальной испытательной машине 1958-У10 при комнатной температуре со скоростью деформации $5,5 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$. Синхронно с механическими характеристиками с помощью акустического комплекса М400 регистрировали параметры акустической эмиссии (активность, общую сумму импульсов, среднюю амплитуду и др.), анализ которых позволял определять, особенности деформации материала на разных стадиях деформации, а амплитудное распределение акустических сигналов АЭ позволяло оценить энергетику деформации. В качестве датчика-регистратора АЭ использовали пьезокерамический преобразователь из керамики ЦТС-19 с резонансной частотой 180 кГц. Датчик крепили на обратной стороне испытательного стола соосно с образцом. Сбор, обработку и анализ результатов, включавших информацию об акустической эмиссии и параметрах деформирования, проводили с помощью ЭВМ и специально разработанных программ обработки данных. Методика регистрации сигналов АЭ и обработки полученных результатов приведена в работе [2].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис.1 приведены кривые сжатия в координатах «напряжение-деформация» образцов технической чистоты (кривая 1) и дистиллированного (кривая 3) кадмия.

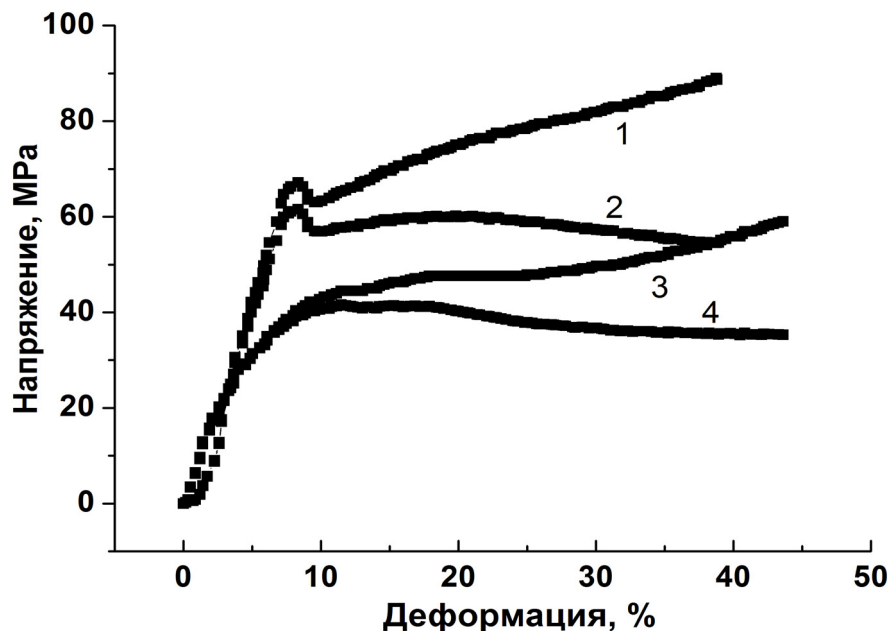


Рис. 1. Кривые деформирования в координатах «напряжение-деформация» образцов технической чистоты (кривая 1) и дистиллированного (кривая 3) кадмия и кривые «истинное напряжение-деформация» (кривые 2 и 4 соответственно)

Обращаем внимание на следующие особенности полученных результатов:

- предел текучести ($\sigma_{\text{т}}^{\text{дист}} = 27,4$ МПа, $\sigma_{\text{т}}^{\text{техн}} = 66,0$ МПа) и напряжение для достижения сравнимой деформации у дистиллированного материала существенно ниже, чем у технического (например, для деформации $\sim 30\%$ $\sigma^{\text{дист}} = 54,3$ МПа, а $\sigma^{\text{техн}} = 85,4$ МПа), то есть в течение процесса сжатия деформирование технического кадмия происходит при более высоких напряжениях. Это вызвано большим количеством примесей в техническом кадмии, которые затрудняют пластическое течение материала и меньшим размером зерна у исходных образцов по сравнению с дистиллированным кадмием (22 мкм и 44 мкм соответственно).

- на кривой деформирования технического материала в области начала пластической деформации четко проявляется зуб текучести;

- кривые деформации свидетельствуют о слабой интенсивности нарастания упрочнения в образцах кадмия и имеют вид подобный кривым деформации при сжатии таких металлов, как цинк, свинец и др. (но радикальным образом отличаются от кривых деформации для аналогичных по геометрии образцов титана ВТ1-0 и других металлов, которые мы предварительно испытывали на стадии отработки методики деформирования сжатием).

Поскольку в процессе испытания на сжатие существенно изменялось сечение образцов, были рассчитаны истинные напряжения, которые действуют на образцы и построены кривые деформации в координатах «истинное напряжение-деформация» (см. рис. 1, кривые 2 и 4).

На этих кривых (кривые 2 и 4) хорошо видно, что в процессе нагружения материала после достижения определенной деформации (12% для технического и 7% для дистиллированного кадмия) наблюдается падение истинного напряжения течения, то есть материал начинает разупрочняться. В связи с малыми скоростями деформации этот эффект нельзя связывать с нагревом образцов и поэтому этот уникальный эффект деформационного разупрочнения был подробно изучен авторами в настоящей работе.

На рис. 2 приведены структуры образцов кадмия различной чистоты в исходном состоянии и после деформации сжатием при комнатной температуре.

Анализ микроструктур образцов технического и дистиллированного кадмия в исходном состоянии и после деформирования (рис. 2) показал, что в процессе деформирования образцов различной чистоты происходит не измельчение (как обычно), а рост зерен (динамика роста и конечный размер зерен зависит от чистоты материала).

Полученные результаты показывают, что деформация образцов кадмия различной чистоты при комнатной температуре со скоростью деформации $5,5 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$ сопровождается их разупрочнением и увеличением размера зерен.

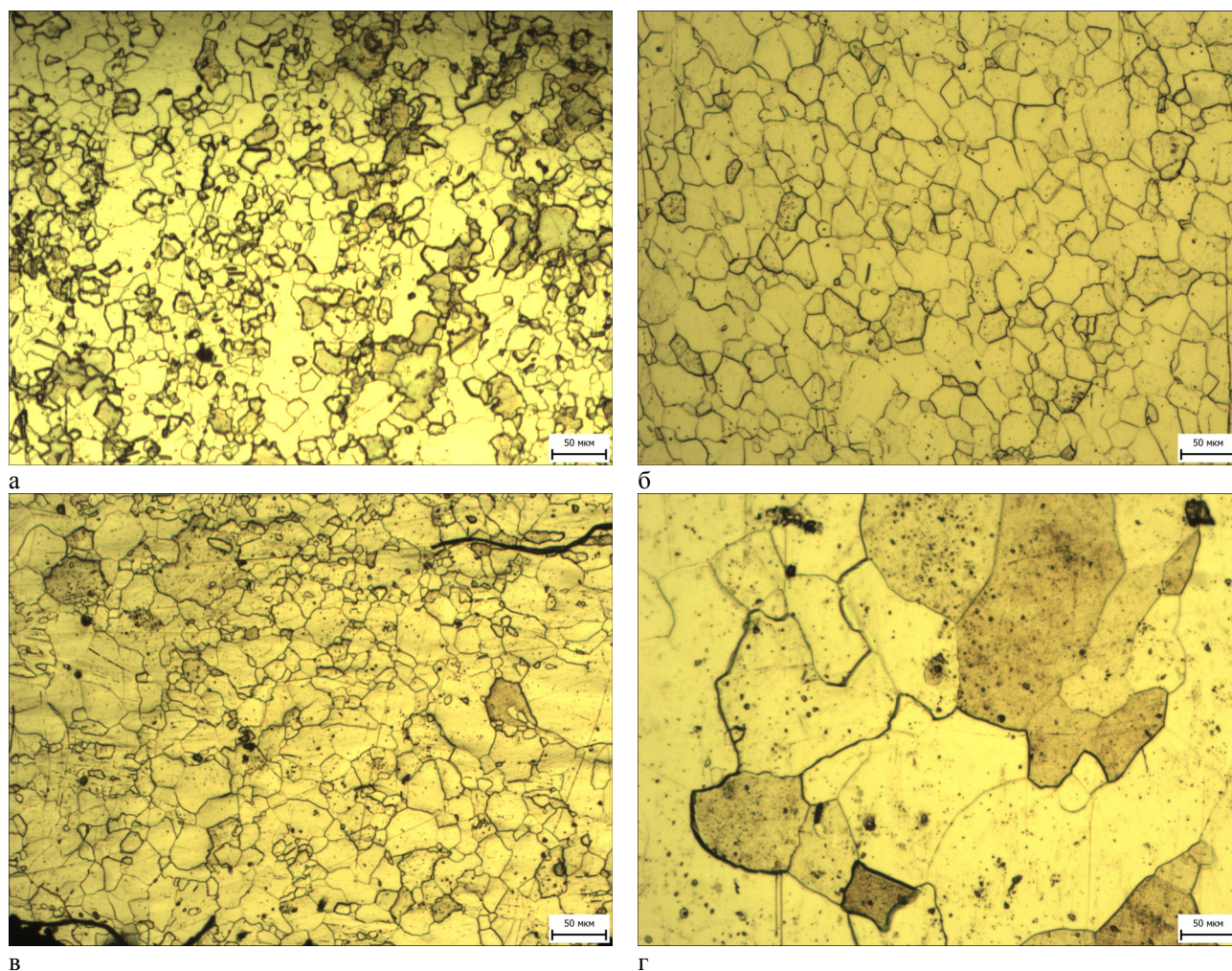


Рис. 2. Структура деформированного технического (а, б) и дистиллированного кадмия (в, г) в исходном состоянии (а, в) и после деформации при 20°C (б, в)

Таким образом, наряду с ранее известным явлением динамической рекристаллизации при деформации металлов обнаружен эффект роста зерен, связанный с трансформацией энергии деформации в энергию роста зерен в чистых металлах с низкой температурой рекристаллизации. Подобное явление ранее наблюдалось лишь при высокой температуре [3-5].

ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для анализа полученных экспериментальных результатов проанализируем имеющиеся в литературе данные об особенностях изменения структуры в процессе холодной деформации металлов.

Стадия деформационного упрочнения

Одним из основных механизмов пластической деформации металлов является внутриверенное скольжение, ведущее к увеличению плотности дислокаций леса и приводящее к упрочнению материала [6-9]. Если у отожженного поликристаллического металла плотность дислокаций обычно равна $10^6 - 10^8 \text{ см}^{-2}$, то при деформации на несколько процентов она возрастает до $10^8 - 10^9$, а при сильной деформации до $10^{11} - 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Следовательно, плотность дислокации при холодной деформации в материале может возрасти на пять-шесть порядков [7].

С ростом нагрузки деформация зерен сопровождается изгибами и поворотами плоскостей скольжения. Зерна вытягиваются в направлении пластического течения. Концентрация дефектов (дислокаций, вакансий, межузельных атомов) внутри зерен возрастает. Дефекты затрудняют движение дислокаций: сопротивление деформированию растет. При степенях деформации примерно 5 – 10% у многих металлов и сплавов начинают формироваться ячеистая структура: сплетения дислокаций связываются между собой, образуя объемные границы областей, внутри которых плотность дислокации сравнительно невелика. Образующиеся при деформации ячейки обычно имеют размер около 1 микрона и на порядок меньше толщину границ (десятые доли микрона). Накопление дислокаций и образование ячеистых структур приводят к существенному затруднению процесса деформирования и к упрочнению металла в ходе пластической деформации [9]. Иными

словами, деформационная обработка приводит металл в неравновесное состояние с повышенной свободной энергией.

Состояние наклепанного металла является термодинамически неустойчивым, поэтому при механической или термической активации система стремится перейти в более стабильное состояние [10].

Различают следующие стадии восстановительных процессов, устраняющих дефекты кристаллической структуры, вносимых деформацией:

- возврат (отдых, полигонизация);
- рекристаллизация (первичная, собирательная, вторичная) [3,4,11-13].

Динамический возврат

Первым включается самый низкотемпературный (низкоэнергетический) разупрочняющий процесс — динамический отдых. У легкоплавких металлов при комнатной температуре подвижность атомов достаточна, чтобы обеспечить активное развитие восстановительных процессов. Начинают работать различные механизмы уменьшения накопленной при деформации энергии. Эти процессы направлены на уменьшение общего количества дефектов кристаллической решетки и перераспределению их в кристаллитах с образованием более равновесных конфигураций. Межузельные атомы аннигилируют на краевых дислокациях и при встрече с вакансиями. Вакансии мигрируют к дислокациям и границам зерен и здесь аннигилируют. Идет локальная перегруппировка дислокаций и взаимная аннигиляция дислокаций разного знака.

Особенностью этого процесса, который протекает при сравнительно низких гомологических температурах ($0,2 - 0,25 T_{пл}$) является тот факт, что возврат протекает без образования и миграции субграниц внутри зерен.

У материала с большим количеством примесей затруднено перемещение вакансий, поэтому динамика возврата несколько ослабевает.

Индикатором работы динамического отдыха при увеличении величины деформации является незначительное изменение (падение) наклона кривой «напряжение-деформация», то есть происходит снижение интенсивности упрочнения материала.

С повышением степени деформации ячеистая структура становится более ярко выраженной. Границы ячеек становятся более узкими, а из объемных они стремятся превратиться в плоские. Ячейки полностью оконтуриваются границами, и внутри ячеек остается совсем мало дислокаций. Начинают создаваться субзерна (хорошо оформленные ячейки с плоскими стенками) и субзеренная структура. Средняя плотность дислокаций при увеличении степени деформации возрастает в результате роста их плотности в скоплениях на границах, а не внутри ячеек. Соседние ячейки и субзерна разориентированы на углы, находящиеся в интервале от нескольких секунд до нескольких градусов.

При деформировании материала процессы образования из ячеистой структуры субзеренной структуры являются свидетельством того, что в материале проходит динамическая полигонизация, которая существенно уменьшает деформационное упрочнение. На стадии динамической полигонизации проходит перестройка дислокационной структуры, которая сформировалась при деформации. Перестройка происходит путем перераспределения дислокаций поперечным скольжением и диффузионным переползанием с выстраиванием дислокаций в стенки (образование плоских дислокационных границ), сопровождаясь их частичной аннигиляцией и образованием субзерен внутри кристаллитов, свободных от дислокаций и отделенных друг от друга дислокационными малоугловыми границами. Субзерна, которые сформированы в процессе полигонизации, при определенной температуре стремятся укрупняться. Экспериментально установлены два механизма этого укрупнения – миграция субграниц и коалесценция субзерен.

При слиянии субграниц и перемещении тройного стыка два субзерна растут за счет третьего, а разориентация субзерен около образующейся границы увеличивается. При коалесценции субзерен граница между субзернами полностью исчезает, так как дислокации уходят из нее в субграницы, окружающие эти субзерна.

Рост субзерен при полигонизации также приводит к увеличению углов разориентировки соседних субзерен. Однако, на стадии полигонизации, границы все время остаются малоугловыми, а угол разориентировки соседних субзерен не превышает $\sim 10 - 15^\circ$ (чаще соседние зерна разориентированы на угол не более $1 - 2^\circ$) [11].

При полигонизации свободная энергия кристалла должна снизиться, потому что в результате перестройки уменьшается плотность дислокаций, а остающиеся стремятся образовать устойчивые конфигурации, отличающиеся минимальной энергией, например в виде стенок или сеток, являющихся малоугловыми границами.

Таким образом, в процессе деформации деформационное упрочнение из-за повышения плотности дислокаций и увеличения эффективности их торможения будет конкурировать с разупрочнением из-за снижения плотности дислокаций и совершенствования дислокационной структуры в результате динамического возврата. При определенной степени деформации в процессе динамического возврата число вновь образовавшихся дислокаций будет меньше, чем число аннигилирующих, поэтому на кривой деформации будет

наблюдаться деформационное разупрочнение [9].

Кроме того, при протекании восстановительного разупрочняющего процесса динамического возврата, в процессе деформирования создаются структурные и энергетические условия необходимые для зарождения центров кристаллизации и протекания процесса динамической рекристаллизации.

Динамическая рекристаллизация

Начиная с определенной степени деформации, у металла происходит существенное изменение структуры и может начинаться процесс динамической рекристаллизации. При этом происходит наиболее радикальное уменьшение объемной энергии деформированных кристаллов за счет уменьшения числа дефектов структуры, внесенных деформацией [12].

Движущей силой первичной стадии динамической рекристаллизации является энергия, аккумулированная в наклепанном металле, связанная в основном с дислокациями и точечными дефектами. Уменьшение плотности дислокаций при переходе системы в устойчивое состояние с неискаженной кристаллической решеткой приводит к высвобождению основной доли этой накопленной энергии. Динамическая рекристаллизация в металле при деформации возникает при достижении критической плотности дислокаций, которой соответствует так называемая критическая степень деформации.

Начало динамической рекристаллизации определяется совместным действием нескольких факторов, прежде всего степенью деформации и температурой, которые соответственно задают критическую плотность дислокаций и диффузионную активность материала.

На начальной стадии рекристаллизации идет образование центров кристаллизации и рост новых равновесных зерен с неискаженной кристаллической решеткой. Главным в механизме зарождения рекристаллизованных зерен является формирование участка с высоким структурным совершенством, окруженного высокоугловыми границами и отделенным этими границами от матрицы. Новые зерна возникают на границах старых зерен и блоков, где решетка была наиболее искажена. Чем больше степень пластической деформации, тем больше возникает зародышей. Зародыши растут путем диффузии атомов от деформированных участков. Когда количество центров станет достаточно много, то из-за пониженной плотности дислокаций внутри этих рекристаллизованных зерен образуется участок разупрочнения. При продолжении деформации этот процесс охватывает весь объем образца.

Количество новых зерен постепенно увеличивается и в структуре не остается старых деформированных зерен. Пока рекристаллизованные зерна с пониженной прочностью занимают небольшую часть объема материала, еще продолжается рост напряжения течения, но с заметным уменьшением коэффициента упрочнения. С увеличением суммарного объема рекристаллизованных участков разупрочнение перекрывает деформационное упрочнение, и напряжение течения начнет уменьшаться. При этом наряду с вытянутыми деформированными зернами появляются более или менее равноосные рекристаллизованные зерна. Площадь материала, занятая новыми зернами, возрастает, а старые деформированные зерна исчезают. Новые зерна имеют более совершенное внутреннее строение, с пониженной плотностью дислокаций.

Размер зерна к завершению начальной стадии динамической рекристаллизации зависит от соотношения скорости зарождения центров кристаллизации и линейной скорости их роста.

По окончании начального этапа динамической рекристаллизации, когда исчезают старые деформированные зерна, структура остается нестабильной из-за большой свободной энергии сильно развитой поверхности границ рекристаллизованных зерен и неуравновешенности поверхностного натяжения на этих границах.

Последующим этапом динамической рекристаллизации являются процессы роста одних рекристаллизованных зерен за счет соседних рекристаллизованных зерен путем миграции высокоугловых границ. Термодинамическим стимулом этой стадии динамической рекристаллизации является свободная энергия границ зерен, а обязательным условием ее развития - неуравновешенность поверхностного натяжения, стремящегося выпрямить искривленные границы и сделать равновесную конфигурацию границ в тройных стыках.

Рекристаллизованные зерна растут путем быстрой миграции их границ в сторону деформированной матрицы. Движущей силой такой миграции является разность в упругой энергии кристаллов по обе стороны от границы из-за разной плотности дислокаций. Движущая высокоугловая граница «выметает» на своем пути дефекты решетки деформированной матрицы, увеличивая объем с более совершенной структурой, с резко меньшей плотностью дислокаций.

Пока рекристаллизованные зерна с пониженной прочностью занимают небольшую часть объема материала, еще продолжается рост напряжения течения. С увеличением суммарного объема рекристаллизованных участков разупрочнение перекрывает деформационное упрочнение, и напряжение течения падает. На кривых «напряжение-деформация» динамический возврат проявляется в снижении коэффициента упрочнения.

При динамической рекристаллизации появившиеся рекристаллизованные зерна с низкой плотностью дислокаций во время своего роста постепенно наклепываются из-за продолжающейся деформации – в них

повышается плотность дислокаций. Участки, рекристаллизовавшиеся в первую очередь, начинают наклепываться раньше и в них быстрее достигаются критическая плотность дислокаций, необходимая для зарождения новых рекристаллизованных зерен, которые затем наклепываются, и т.д. Наклеп рекристаллизованных зерен уменьшает разность в плотности дислокаций по обе стороны от мигрирующей границы, а так как эта разность является движущей силой миграции, то скорость роста рекристаллизованных зерен уменьшается. Чем выше температура и ниже скорость деформации, тем крупнее и совершеннее рекристаллизованные зерна.

Многokrратно чередующие циклы динамической рекристаллизации и наклепа рекристаллизованных зерен соответствует установившейся стадии с неизменным средним размером зерна.

Исключительно сильно на размер зерна в завершающей стадии начальной стадии динамической рекристаллизации влияет степень деформации. В зернах, где деформация достигла критической (обычно от 5 до 15%) величины, вырастает крупное зерно.

В определенный момент деформации наступает динамическое равновесие между количеством новых дислокаций и исчезающих в результате непрерывно продолжающейся динамической рекристаллизацией (установившаяся стадия деформации). Обычно переход к установившейся стадии происходит после истинной деформации на 10 – 50% и зависит от скорости деформирования и температуры [4].

На кривых деформации динамическая рекристаллизация материала проявляется в падении напряжения течения и после определенной деформации переходом к установившейся стадии деформации. Таким образом, в процессе деформирования материала, работающие параллельно упрочняющие и динамические разупрочняющие процессы, приводят к разупрочнению материала и росту зерна в нем. Естественно, указанные процессы во многом определяются температурой деформации, а точнее – ее соотношением с температурой плавления исследуемого металла. Это связано с тем, насколько развита диффузионная подвижность при температуре испытаний и с влиянием на диффузионную подвижность уровня напряжений.

Рассмотрим более подробно полученные в работе результаты.

При анализе особенностей изменения структуры кадмия в процессе деформирования следует учитывать следующее. Кадмий относится к легкоплавким металлам и поэтому все установленные температурные области для многих металлов (гомологические температуры в частях от $T_{пл}$) начала прохождения процессов статического возврата и рекристаллизации оказываются значительно ниже комнатной температуры, при которой авторы проводили испытания образцов кадмия.

Иными словами, в нашем случае термическая активация восстановительных процессов энергетически обеспечена на всем этапе деформирования кадмия при комнатной температуре, а начало работы разупрочняющих процессов определяется только уровнем деформации и величиной скорости деформирования.

В процессе испытания образцов кадмия на кривой «нагрузка – истинная деформация» после прямолинейного участка, которая соответствует стадии упругой деформации, наблюдаются криволинейные участки, которые отражают особенности протекания пластической деформации. Условно, эти участки кривой деформации разделяют на три стадии: деформационного упрочнения, разупрочнения и установившегося течения [8,9].

Из рис. 1 (кривые 2 и 4) видно, что в процессе нагружения материала после достижения определенной деформации (12% для технического и 7% дистиллированного кадмия) наблюдается падение истинного напряжения течения, то есть материал разупрочняется.

Проанализируем характер и причины изменений кривых деформации при сжатии образцов кадмия при комнатной температуре. В начальный момент сжатия образцов кадмия на кривой деформации регистрируется упругая деформация. В области предела текучести наблюдается существенное различие в поведении кривых деформации образцов кадмия различной чистоты. У образцов дистиллированного кадмия в области предела текучести кривая деформации имеет плавный переход к пластическому течению. На кривой деформации технического кадмия хорошо просматривается зуб текучести, который отсутствует на кривой деформации дистиллированных образцов кадмия (рис. 1, кривые 1 и 3). Наличие зуба текучести у технического кадмия обусловлено скоплением атомов примесей вблизи дислокаций и блокированием их перемещения. Некоторое повышение напряжения, наблюдаемое на кривой деформации, связано с тем, что отрыв дислокаций от скоплений атомов примесей требует более высоких напряжений, чем последующее их движение в металле [6,8,14].

Из рис. 1 видно, что при напряжениях выше предела текучести в образцах кадмия начинается пластическое течение и наблюдается присущее этому процессу деформационное упрочнение [9,14]. Сравнение кривых 1 с 2 и 3 с 4 рис. 1 показывает, что ход кривых деформации не только отличается коэффициентом упрочнения, но и характером его изменения. На машинных диаграммах (в координатах «нагрузка-деформация») наблюдается заметный подъем кривой деформации, который вызван ростом поперечного сечения образцов, происходящим при деформировании. Сильное влияние увеличения сечения образца скрывает очень важную особенность деформирования, которая хорошо видна на расчетных истинных кривых деформирования: малую величину коэффициента упрочнения у образцов кадмия, а после небольшой их деформации тенденцию к постоянному его уменьшению. По нашему мнению, это связано с началом работы

восстановительных динамических процессов – на начальной стадии пластического течения этим процессом, вероятно, является динамический отдых. Это самый низкотемпературный (малоэнергетический) из восстановительных процессов.

С увеличением величины деформации образцов кадмия коэффициент упрочнения монотонно снижается, вероятно, к процессу динамического отдыха подключается процесс динамической полигонизации. Как было показано выше, работа этих процессов приводит к снижению концентрации дефектов и плотности дислокаций (концентрация которых в результате деформирования увеличивается на 5-6 порядков), формированию субзеренной структуры: областей кристалла, разделенных малоугловыми границами и свободных от дислокаций. Помимо движения одиночных дислокаций, динамическая полигонизация включает на стадии формирования субграниц миграцию дислокационных групп и на стадии роста субзерен – миграцию малоугловых дислокационных границ.

Таким образом, при дальнейшей деформации образца, параллельно с процессом упрочнения начинают работать два восстанавливающих процесса динамического возврата (динамический отдых и полигонизация), которые снижают упрочнение материала.

Дальнейшая деформация образцов кадмия создает условия для роста и увеличения угла разориентации субзерен. Можно утверждать, что при деформации около 10% к процессу подключается начальная стадия динамической рекристаллизации. Активность восстановительных процессов существенно растет и заметно меняет характер кривой деформации. При деформациях порядка 15% включается следующая стадия динамической рекристаллизации: возникают зародыши новых зерен и начинается их рост.

Новые зерна имеют более совершенную структуру и отсутствие дислокаций в теле зерен. То есть в материале интенсивно создаются зоны разупрочнения, которые быстро распространяются на весь материал. Активность восстановительных процессов существенно растет и заметно меняет характер кривой деформации образцов кадмия. Дальнейший ход кривой деформации будет определяться параллельной работой процессов упрочнения и восстанавливающими разупрочняющими процессами.

В отличие от статических процессов восстановления свойств материала после деформационной обработки путем высокотемпературных отжигов со строго определенной стадийностью, динамические процессы восстановления, которые идут непосредственно вместе с процессами деформирования и активируются определенным уровнем деформации (и, соответственно – диффузионной подвижности) являются более сложными.

Следует учитывать, что статические процессы активируются температурой и зависят от величины температуры и времени обработки, а динамические процессы активируются деформацией и зависят от величины деформации и от скорости деформирования.

Различия протекания статических и динамических восстановительных процессов приводит к особенностям формирования структуры материала. Так при динамической рекристаллизации создается неоднородная структура по объему металла и внутри отдельных зерен, связанная с тем, что одни участки материала только что рекристаллизовались, а другие ранее рекристаллизованные участки начинают упрочняться, а в третьих идут процессы динамического возврата. Многократно чередующие циклы динамической рекристаллизации и наклепа рекристаллизованных зерен в зависимости от преобладания одного из этих процессов приводит либо к снижению коэффициента упрочнения и разупрочнению, либо к его постоянству, что приводит к установившейся стадии деформации.

Стадия установившегося течения просматривается на кривой деформации дистиллированного кадмия при деформировании на 30 – 32% (кривая 4, рис. 1). У кадмия технической чистоты этой стадии нет, вероятно, из-за того, что при деформировании этого сорта образцов кадмия мы не достигли величины необходимой истинной деформации, при которой происходит переход к стадии установившегося течения (считается, что переход к установившейся стадии происходит после деформации материала на 30-50%). Возможно, примеси существенно влияют на деформационный порог начала динамического равновесия новых и исчезающих дислокаций [4].

Исследование акустической эмиссии

Для более глубокого понимания процессов, которые протекают в образцах кадмия при деформировании, синхронно с механическими характеристиками регистрировали параметры акустической эмиссии.

На рис. 3 приведены совмещенные зависимости активности АЭ (кривая 2) с кривой деформации (кривая 1) для технического и дистиллированного кадмия от уменьшения высоты образца при сжатии.

Из рис. 3 видно, что акустическая эмиссия (АЭ) начинает регистрироваться уже на стадии упругой деформации. Этот факт мы неоднократно наблюдали при испытаниях различных конструкционных материалов (Be, Zr, Ti и др.) и он связан с регистрацией процессов микропластической деформации материалов [2,15-17].

Следует обратить внимание на существенные отличия кривых зависимости активности АЭ от деформации для образцов технического и дистиллированного кадмия. У технического кадмия в области предела текучести наблюдается колебание активности АЭ от максимальных значений 500 до минимальных – 50 имп/с. Вероятно, это связано с особенностями отрыва дислокаций от примесей и повторным закреплением дислокаций примесями или с процессами сбросообразования, которые изучал Орован и в своей работе показал, что

цилиндрические образцы кадмия при сжатии претерпевают локальные изломы в виде сбросов [18]. Полосы сброса образуются постепенно во время сжатия путем возрастающего поворота решетки, который может быть от единицы до нескольких десятков градусов.

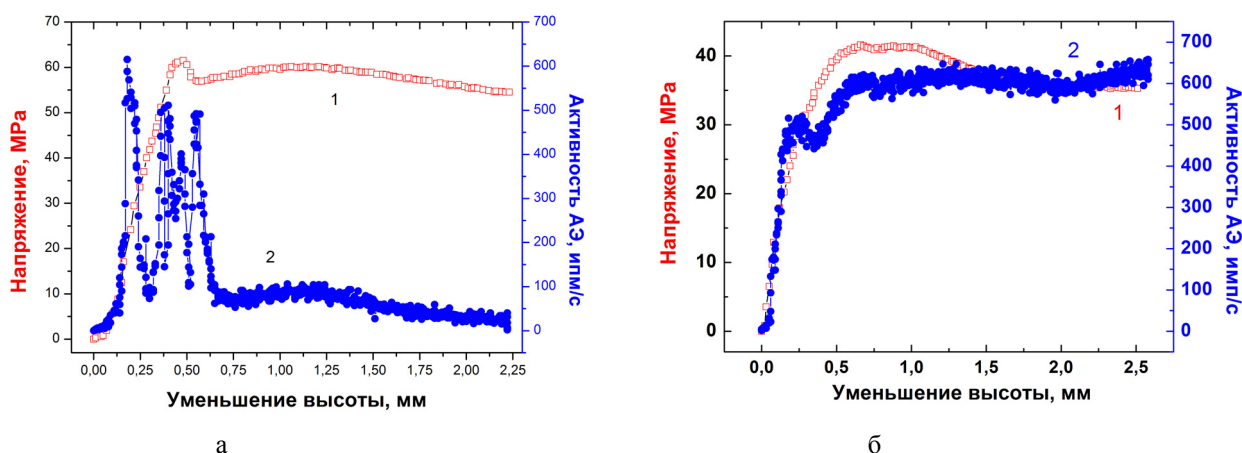


Рис. 3. Зависимость напряжения (кривая 1) и активности АЭ (кривая 2) у образцов технического (а) и дистиллированного кадмия (б) от уменьшения высоты образца при деформировании

Существенное увеличение активности АЭ обоих сортов кадмия в области предела текучести является характерным откликом параметров АЭ на начало пластического течения материала [19,20]. С увеличением деформации активность АЭ у образцов технического кадмия уменьшается и продолжает оставаться низкой в течение всего процесса деформирования. Такой вид зависимости активности АЭ характерен для многих конструкционных материалов деформированных растяжением и объясняется существенным исчерпанием числа движущихся дислокаций после прохождения предела текучести, где наблюдается максимум кривой активности АЭ [21,22]. А у дистиллированного кадмия активность после прохождения предела текучести не уменьшается, а продолжает оставаться на достаточно высоком уровне (600 имп/сек). Возможно, это связано с тем, что число источников сигналов не уменьшается за счет особенности протекания процессов, связанных с непрерывным возникновением при деформации новых подвижных дислокаций, которые поддерживают высокую активность акустического излучения.

Другое объяснение проявления такой зависимости активности при деформации дает в своей работе Р.О. Кайбышев при анализе роста зерен при динамической рекристаллизации магниевых сплавов [3]. Он установил, что во время пластического течения происходит плавное увеличение размера рекристаллизованных зерен. Причиной необычной зависимости размера рекристаллизованных зерен от степени деформации является образование двух разных структурных составляющих рекристаллизованных зерен. Их появление связано с различными механизмами деформации.

На ранних стадиях пластического течения действует двойникование. В результате активизируется «двойниковый» механизм динамической рекристаллизации, который приводит к образованию цепочек новых зерен на месте старых двойников. Формирующиеся рекристаллизованные зерна первой структурной компоненты близки по своему размеру к толщине двойников. Следует отметить, что «двойниковые» зерна образуются только на ранней стадии пластического течения. Формирование второй компоненты рекристаллизационного объема происходит благодаря действию «субзеренного» механизма динамической рекристаллизации, который связан со скольжением, накоплением и перераспределением, в объеме исходных зерен, дислокаций.

Еще более сильные различия проявились при анализе амплитудного распределения сигналов АЭ и зависимости вклада сигналов различной амплитуды в спектр АЭ. Гистограммы амплитудного распределения образцов технического и дистиллированного кадмия приведены на рис. 4. На рис. 5 показано изменение средней амплитуды импульса АЭ у образцов технического и дистиллированного кадмия в течение деформирования. Из рис. 4 видно, что в спектре распределения амплитуд у образцов технического кадмия преобладают сигналы низкой амплитуды, а у дистиллированного кадмия большинство сигналов в спектре АЭ высокоамплитудные. Обращаем внимание на то, что на стадии разупрочнения (столбик 2 гистограммы) вклад высокоамплитудных сигналов АЭ существенно больший по сравнению с распределением при деформации на стадии упрочнения (столбик 1). Из рис. 5 следует, что в течение всего процесса деформирования средняя амплитуда импульса АЭ у образцов дистиллированного кадмия в 2-4 раза была больше, чем амплитуда импульса АЭ у образцов технического материала.

Амплитуда сигналов АЭ, являясь энергетическим параметром, позволяет установить природу источника, генерирующего сигналы АЭ [19,21]. Поэтому, можно предположить, что деформация образцов технического кадмия реализуется низкоэнергетическими процессами, скорее всего дислокационным скольжением. А при

деформировании дистиллированного кадмия источники АЭ высокоамплитудные. Также следует обратить внимание, что они начинают работать сразу же после начала деформирования. Из факторов, которые влияют на генерацию сигналов АЭ большой амплитуды, следует выделить: большой размер зерна и деформация двойникованием [19,20].

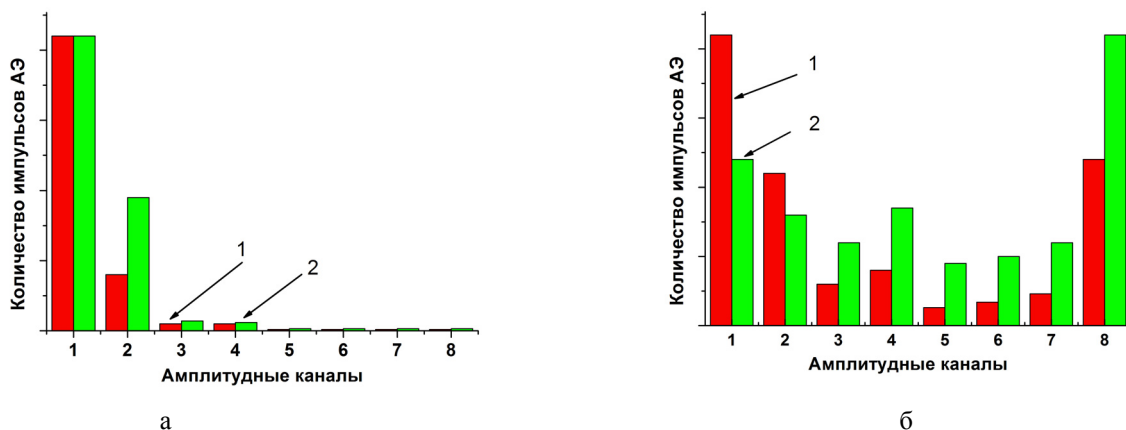


Рис. 4. Амплитудное распределение сигналов АЭ при деформировании образцов технического (а) и дистиллированного (б) кадмия: 1 – стадия упрочнения; 2 – стадия разупрочнения

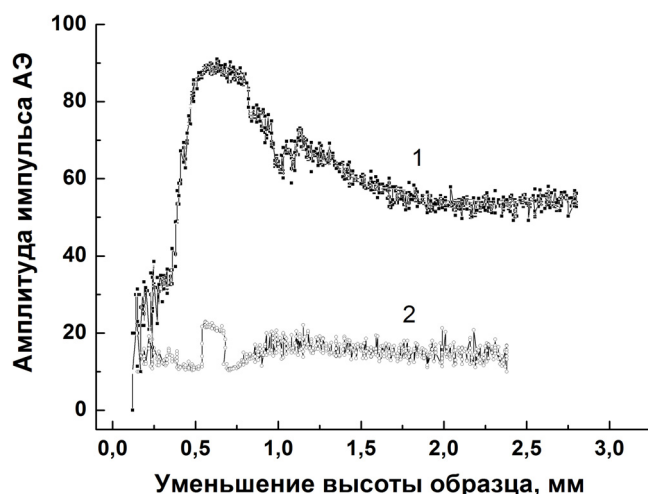


Рис. 5. Зависимость средней амплитуды импульса АЭ от уменьшения высоты образца дистиллированного (кривая 1) и технического (кривая 2) кадмия

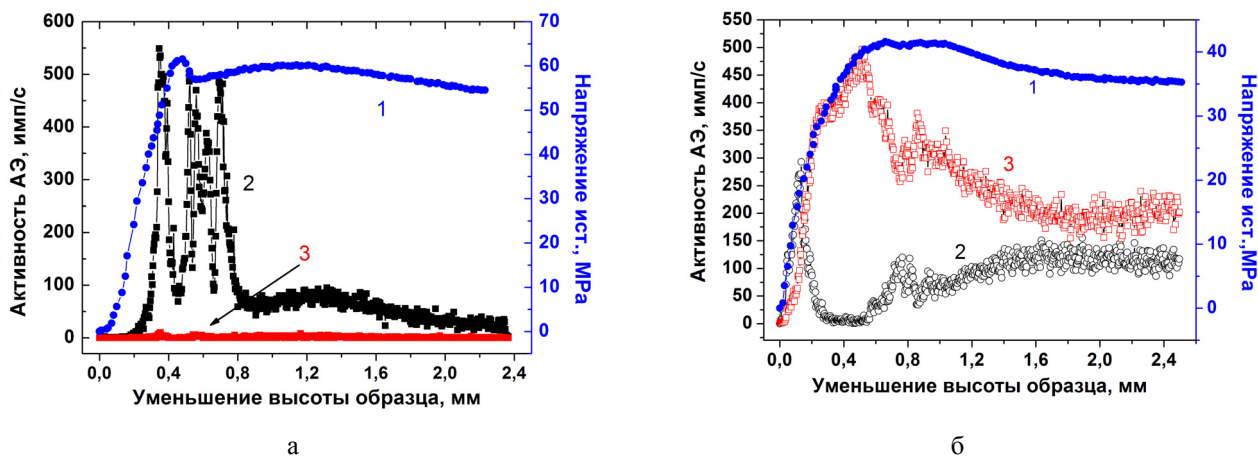


Рис.6. Совмещенный график кривой деформации (кривая 1) и зависимости изменения количества низко- (кривая 2) и высокоамплитудных (кривая 3) импульсов АЭ при деформировании образцов кадмия технической чистоты (а) и дистиллированного (б)

Поэтому больший размер зерна у исходных образцов дистиллированного кадмия и его энергичный рост непосредственно в процессе деформирования может быть причиной генерации сигналов АЭ с большей амплитудой. Высокая амплитуда сигналов АЭ, которая регистрируется на начальной стадии деформирования дистиллированного кадмия, вероятно, связана с процессами двойникования, а при дальнейшем деформировании высокая амплитуда является следствием генерации высокоамплитудных сигналов АЭ материалами с более высоким размером исходного зерна и его ростом в процессе деформирования.

Ранее проведенные исследования при деформировании сжатием образцов магния позволили получить зависимость изменения активности с максимумом в области предела текучести и резким снижением активности АЭ при дальнейшем деформировании [15]. Напротив, при индентировании сферическим индентором образцов циркония и его сплава Zr-1%Nb активность АЭ после предела текучести все время увеличивалась [2]. Поэтому вопрос о причинах резкого уменьшения активности генерации сигналов АЭ низкой амплитуды в образцах кадмия при напряжениях чуть выше предела текучести и отсутствие в спектре АЭ высокоамплитудных сигналов, а также высокая активность генерации исключительно высокоамплитудных сигналов АЭ в течение всего процесса деформирования образцов дистиллированного кадмия остается открытым.

Значительные различия в характере изменения активности АЭ, амплитудном распределении и вкладе импульсов различной амплитуды в спектр сигналов АЭ при деформировании может свидетельствовать о сильном влиянии чистоты исходного металла на особенности пластической деформации. Сильное влияние химического состава материала и исходной микроструктуры на размер рекристаллизованных зерен и кинетику динамической рекристаллизации магниевых сплавов также отметил в своей работе Р.О. Кайбышев [3].

Существенные различия акустико-эмиссионных характеристик у образцов технического и дистиллированного кадмия создает впечатление, что мы испытываем два разных материала с различным механизмом деформации, а не один и тот же материал с небольшим отличием в количестве примесей. Для правильной интерпретации полученных результатов необходимы дальнейшие исследования с более широким привлечением методов структурного анализа.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные в работе результаты показывают, что деформация кадмия различной чистоты при комнатной температуре со скоростью $5,5 \cdot 10^{-4} \text{ c}^{-1}$ сопровождается их разупрочнением и ростом зерна. Формирование структуры в образцах кадмия, которые деформируют сжатием, происходит под влиянием деформационного упрочнения и восстановительных (разупрочняющих) процессов: динамического возврата первого рода, динамической полигонизации и динамической рекристаллизации.

В отличие от закономерностей прохождения этих процессов после предварительной деформации и последующих отжигов, особенности работы этих процессов состоят в том, что они протекают непосредственно в процессе деформирования. После начала деформирования и прохождения стадии упругой деформации начинается пластическая деформация материала. После незначительной деформации материала (3 – 5%) с небольшим интервалом последовательно включаются в работу отдых, потом полигонизация, затем первичная и собирательная рекристаллизация, которые продолжают совместно работать до окончания процесса деформации.

Обращаем внимание на то, что простые представления о статической рекристаллизации и возврате недостаточны для описания комплексного действия динамических процессов разупрочнения. Также достаточно сложно установить точные границы смены стадийности и определить вклад каждого процесса на различных участках деформирования.

Следует отметить, что на особенность прохождения динамических разупрочняющих процессов в процессе сжатия образцов кадмия сильное влияние оказывает чистота исходного металла. Это влияние проявляется как на характере изменения кривых деформации, так и на регистрируемых параметрах акустической эмиссии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bernabey R, Virich V.D., Grinev B.V., Danevich F.A., Kovtun G.P., Mokina V.M., Nagornaya L.L., Nagornyy S.S., Nisi S., Solopikhin D.A., Tretyak V.I., Shcherban'A.P. Poluchenie Cd i ^{106}Cd vysokoy chistoty dlya stsintillyatorov CdWO_4 i $^{106}\text{CdWO}_4$ [Production of high purity Cd and ^{106}Cd for CdWO_4 and $^{106}\text{CdWO}_4$ scintillators] // *Metallofizika i noveyshie tekhnologii* [Metallophysics and the latest technologies]. – 2008. – Tom 30 spets. vypusk. – P. 477-486. (in Russian)
2. Stoev P.I., Papirov I.I., Butenko I.N. Akusticheskaya emissiya chistogo tsirkoniya pri indentirovani [Acoustic emission of pure zirconium under indentation] // *Voprosy atomnoy nauki i tekhniki* [Problems of atomic science and technology]. Seriya «Fizika radiatsionnykh povrezhdeniy i radiatsionnoe materialovedenie». – 2009. – No. 6. – P. 36-41. (in Russian)
3. Sitdikov O., Kaibyshev R. Dynamic recrystallization in pure magnesium // *Institute for Metals Superplasticity Problems, Materials Transection.* – 2001. – Vol. 42. – No.9. – P. 1928-1937.
4. Novikov I.I. *Teoriya termicheskoy obrabotki metallov* [Theory of heat treatment of metals]. - M: «Metallurgiya», 1986. - 480p. (in Russian)
5. Papirov I.I. i dr. *Plasticheskaya i sverkhplasticheskaya deformatsiya berilliya* [Plastic and superplastic deformation of beryllium]. - Izd. Dom MISiS, 2014. - 208p. (in Russian)
6. Polukhin P.I., Gorelik S.S., Vorontsov V.K. *Fizicheskie osnovy plasticheskoy deformatsii* [The physical fundamentals of plastic deformation]. - M: «Metallurgiya», 1982. - 584p. (in Russian)

7. Khonikomb R. Plasticheskaya deformatsiya metallov [Plastic deformation of metals.]. -M: «Mir», 1972. - 408 p. (in Russian)
8. Reiner M., Levis H.K. Deformation, strain and flow. - London, 1969- 347p.
9. Trefilov V.I. Deformatsionnoe uprochnenie i razrushenie polikristallicheskih metallov [Deformation hardening and destruction of polycrystalline metals]. - Kiev: «Naukova dumka», 1989. - 256p. (in Russian)
10. Gottshytayn G. Fiziko-khimicheskie osnovy materialovedeniya [Physicochemical fundamentals of materials science]. - Izd-vo «Binom. Laboratornye znaniya», 2016. - 400p. (in Russian)
11. Khessner F.N. Rekristallizatsiya metallicheskih materialov [Recrystallization of metallic materials]. - M.: «Metallurgiya», 1982. - 352p. (in Russian)
12. Humphreys F.J., Hatherly M. Recrystallization and Related annealing Phenomena. – 2 nd ed.-Elsevier, 2004.- 605p.
13. Gorelik S.S. Rekristallizatsiya metallov i splavov [Recrystallization of metals and alloys]. - M: «Metallurgiya», 1987. - 403p. (in Russian)
14. Polukhin P.I. Soprotivlenie plasticheskoy deformatsii metallov i splavov [Resistance to plastic deformation of metals and alloys]. - M: «Metallurgiya», 1983. - 352p. (in Russian)
15. Papirov I.I., Stoev P.I., Pikalov A.I., Emlyaninova T.G. Study of acoustic emission during deformation of magnesium alloy // East European Journal of Physics. – 2015. – Vol.2. – No.1. – P.63-70.
16. Papirov I.I., Ivantsov V.I. Mikroplastichnost' i razmernaya stabil'nost' berilliya [Microplasticity and dimensional stability of beryllium] // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki [Problems of atomic science and technology]. Seriya «Fizika radiatsionnykh povrezhdeniy i radiatsionnoe materialovedenie». – 1998.– Vol.6 (72). – P.121-125. (in Russian)
17. Chishko K.A. Dislokatsionnye mekhanizmy akusticheskoy emissii plasticheskii deformiruemyykh kristallov [Dislocation mechanisms of acoustic emission of plastically deformed crystals].- Kharkov: Preprint FTINT AN USSR, 1977- 37p. (in Russian)
18. Orowan E. A type of plastic deformation new in metals // Nature. – 1942. – Vol.149. – P.643-647.
19. Bunina N.A. Issledovanie plasticheskoy deformatsii metallov metodom akusticheskoy emissii [Investigation of plastic deformation of metals by acoustic emission method]. - L.: Izdatel'stvo Leningradskogo universiteta. 1990.-156p. (in Russian)
20. Strizhalo V.A., Dobrovolskiy Yr.V., Strel'chenko V.A. Prochnost' i akusticheskaya emissiya materialov i elementov konstruktivnykh [Strength and acoustic emission of materials and elements of constructions]. - Kiev: «Naukova dumka», 1990. - 232p. (in Russian)
21. Greshnikov V.A., Drobot Yr.B. Akusticheskaya emissiya [Acoustic emission]. - M.: «Izd-vo standartov», 1976.- 272p. (in Russian)
22. Tanaka H., Horiuchi R. Acoustic emission due to deformation twinning in titanium and Ti-6Al-4V alloy // Scripta Metallurgica. – 1975. –Vol. 9. – P.777-780.

PACS: 92.70.-j, 42.79.Ek.

MAXIMUM TEMPERATURE IN AN IDEAL GREENHOUSE**O. Ivashtenko***V. N. Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine**Svobody Sq. 4, Kharkiv, Ukraine, 61022**E-mail: arinaivashtenko@gmail.com*

Received April 28, 2017

The greenhouse is a tool for the accumulation of solar energy and its conversion into heat. The article investigates the heating of the greenhouse caused by the difference in the transmissivity of glass in different wavelength ranges. Firstly, some facts from the history of the phenomenon investigation are presented. The principle of greenhouse operation is considered. Then we explain the greenhouse effect theoretically using a simplified model, and carry out an experiment. In our experiment, the heating of a 1 m² surface greenhouse model has been observed. The temperature changes have been registered, and the ultimate temperature has been measured. Further, a model of an ideal greenhouse is proposed in order to reduce heat losses. The main principles and generalizations of the greenhouse effect are discussed. The role of the glass transmission spectrum, which is one of the most important factors determining the maximum temperature is investigated. Maximum temperatures for different spectra are compared. We calculate theoretically the maximum temperature, which can be achieved in an ideal greenhouse under ideal conditions. Then we consider other factors limiting temperature growth. Finally, the ways of application of the greenhouse effect in the development of solar collectors are indicated.

KEYWORDS: greenhouse effect, heating by radiation, idealized model, maximum temperature, solar collector**МАКСИМАЛЬНА ТЕМПЕРАТУРА В ІДЕАЛЬНОМУ ПАРНИКУ****О. Іваштенко***Харківський національний університет ім. В. Н. Каразіна, Харків, Україна**пл. Свободи 4, м. Харків, Україна, 61022*

Парник - це пристрій для акумуляції сонячної енергії і її перетворення в тепло. У статті досліджується нагрівання парника, обумовлене різницею проникної здатності скла в різних діапазонах довжин хвиль. Представлені факти з історії вивчення явища. Розглянуто принцип роботи парника. За допомогою спрощеної моделі парниковий ефект досліджено теоретично, а також представлені результати експерименту. Експериментально простежено нагрівання моделі парника площею 1 м². Зареєстровано зміну температури з часом і отримано значення граничної температури. Далі запропоновано модель ідеального парника для зменшення тепловтрат. Обговорюються головні принципи та узагальнення парникового ефекту. Досліджується роль спектра пропускання скла, який є одним з найважливіших факторів, що визначають максимальну температуру. Порівнюються граничні температури для кількох спектрів. Теоретично розраховано максимальну температуру, якої можна досягти в ідеальному парнику за ідеальних умов. Розглянуто фактори, що обмежують зростання температури. Вказано шляхи застосування парникового ефекту при розробці сонячних колекторів.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: парниковий ефект, нагрівання випромінюванням, ідеалізована модель, максимальна температура, сонячний колектор**МАКСИМАЛЬНАЯ ТЕМПЕРАТУРА В ИДЕАЛЬНОМ ПАРНИКЕ****А. Іваштенко***Харьковский национальный университет имени В. Н. Каразина, Харьков, Украина**пл. Свободы 4, г. Харьков, Украина, 61022*

Парник - это устройство для аккумуляции солнечной энергии и её превращения в тепло. В статье исследуется нагревание парника, обусловленное различием пропускающей способности стекла в разных диапазонах длин волн. Представлены факты из истории исследования явления. Рассмотрен принцип работы парника. С помощью упрощённой модели парниковый эффект исследован теоретически, а также представлены результаты эксперимента. Экспериментально исследовано нагревание модели парника площадью 1 м². Зарегистрировано изменение температуры со временем и получено значение предельной температуры. Далее предложена модель идеального парника для уменьшения теплотерь. Обсуждаются главные принципы и обобщения парникового эффекта. Исследуется роль спектра пропускания стекла, который является одним из самых важных факторов, определяющих максимальную температуру. Сравняются предельные температуры при различных спектрах. Теоретически рассчитана максимальная температура, которой можно достичь в идеальном парнике при идеальных условиях. Рассмотрены факторы, ограничивающие рост температуры. Указаны пути применения парникового эффекта при разработке солнечных коллекторов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: парниковый эффект, нагревание излучением, идеализированная модель, максимальная температура, солнечный коллектор

Greenhouses are used to promote the growth of plants and to increase temperature using only solar energy. The same principle is extensively used to heat air and water. It also has prominent implications in the field of climate.

The study and explanation of the greenhouse effect phenomenon began in the 18th century. Natural philosophers tried to understand the increase of the Earth's temperature and established the analogy between the heat-conserving

capacity of the greenhouse and that of the atmosphere. Joseph Fourier (1786-1830) studied the distinction between the light heat (*chaleur lumineuse*) received on the Earth from the sun and the dark heat (*chaleur obscure*) reflected back into the atmosphere. He also pointed at the lesser facility with which dark heat passes through the atmosphere, thus bringing about higher temperatures than would otherwise have been the case. In describing this phenomenon, Fourier drew on experiments conducted by Horace-Benedict de Saussure (1740-1799). De Saussure had constructed an instrument he called a "solar captor" that consisted of a box with an interior covered with black cork, into which equidistant layers of glass were inserted. He used his instrument in experiments around Mont Blanc to show that the temperature under the glass was much higher than outside, and that it remained the same irrespective of the altitude [1] [3].

The incident solar radiation passes through the glass. The surface absorbs visible light and re-emits it in the longwave infrared. Glass is a bad transmitter of the longwave infrared radiation, which is why it can not pass back easily. It stays inside the greenhouse, causing the temperature to rise (Fig. 1(left)). Indeed, in the schematic we see that the solar radiation spectrum is almost entirely in the glass' transmission range, so most of this radiation penetrates freely into the greenhouse. But the thermal radiation from the surface lies predominantly outside of the range of transmission, so the radiation can not go out (Fig. 1(right)). The transmittance coefficient of glass k depends on the wavelength λ and is determined as the ratio of the transmitted radiation to the incoming radiation.

Robert Williams Wood (1868-1955) doubted that this effect played the key role in the elevation of temperature. From his point of view, it appeared much more probable that the part played by the glass was the prevention of the escape of the warm air heated by the ground within the enclosure [2]. We agree that the prevention of air convection plays a key role in greenhouse heating at low temperatures. However, in this article we will focus on the study of the temperature increase caused by the difference in glass transmittance. We will show that this effect is also important, especially at high temperatures.

In general, the purpose of this work is to study the impact of the mentioned effect on heating of the greenhouse. We try to find the maximal possible in principle temperature and to understand what is the reason for stopping of its growth. Indeed, it is possible to eliminate the air convection and to reduce considerably the heat transfer by thermal conductivity. So, other ways of heat losses become decisive. Imaging consequent optimizations, we will predict the maximum temperature for different levels of idealization reaching finally the limit caused by the Second Law of Thermodynamics. This work is rather an overview of concerned general principle that has many interesting and very complicated details.

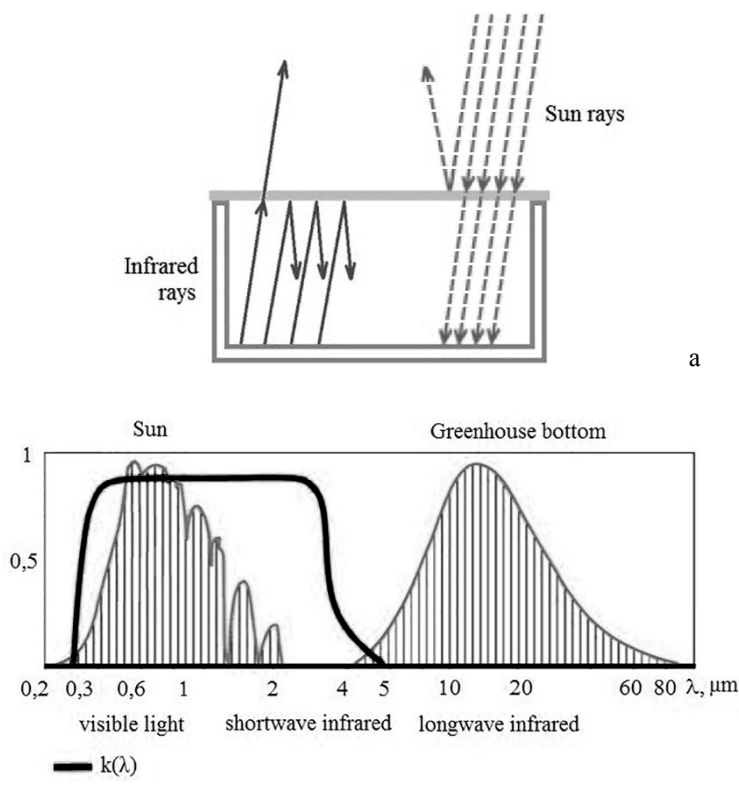


Fig.1. A schematic that shows how a greenhouse operates (a). Sunlight (dashed arrows) penetrates into the greenhouse, then the bottom absorbs it and reemits it in the form of infrared light (solid arrows). As the glass is opaque to this radiation, it cannot leave the greenhouse. The emission spectrum of the Sun and of the greenhouse (b). The transmittance spectrum of window glass $k(\lambda)$ is shown with a black line [4]. We see that the ordinary window glass is mostly transparent to the Sun's rays, but opaque to the greenhouse bottom's low-temperature radiation. This is what causes the greenhouse effect.

METHODS

Despite the fact that the glass delays radiation and prevents the escape of the heated air, there are heat losses caused by emission of the heated surface and heat conductivity of the glass and the walls. Considering these losses, we can write the heat balance equation for the greenhouse as follows:

$$P_{\odot} = P_{em} + P_{cond}, \tag{1}$$

where P_{\odot} is the energy coming from the Sun, P_{em} is the energy emitted by the greenhouse's absorbing layer, and P_{cond} is the energy loss due to heat conduction. Consider separately each component of this equation.

To find the radiation power received by the greenhouse' absorbing layer, we should take into consideration the spectral intensity of solar radiation on the ground level (Fig. 2) and calculate the total power received by the greenhouse according to the value of the glass transmission coefficient $k(\lambda)$. Our model treats the window as a selective mirror, so that it reflects the untransmitted radiation. Thereby we obtain the following equation

$$P_{\odot} = \int (1 - A) \cdot I_{\odot}(\lambda) \cdot k(\lambda) d\lambda, \tag{2}$$

where A is albedo of the surface, I_{\odot} is the solar radiation intensity at the Earth's surface, and k is the transmittance of the glass.

Now let us consider the heated greenhouse absorbing layer's radiation. A part of it passes through the walls, the floor and the glass, and so leaves the greenhouse. To reduce losses, it is necessary to cover the walls and the floor with a foil. Some types of foil are capable of reflecting 99% of infrared radiation, so that the walls and the floor become insulated. The emitted power transmitted through the glass is

$$P_{em} = \int I_e(\lambda) \cdot k(\lambda) d\lambda. \tag{3}$$

Here, k is the transmittance of the glass and I_e is the intensity of radiation, $I_e(\lambda) = f \cdot (1 - A_{\lambda})$, where f is the black body spectral emissivity. According to the Planck's law,

$$f(\lambda, T) = \frac{2\pi hc^2}{\lambda^5 (e^{\frac{hc}{kT\lambda}} - 1)}. \tag{7}$$

Losses caused by thermal conductivity (glass, walls, floor) are estimated in the following equation

$$P_{cond} = -\alpha \frac{S\Delta T}{l}, \tag{4}$$

where α is the thermal conductivity coefficient, S is the surface area, ΔT is the temperature difference, and l is the material's depth.

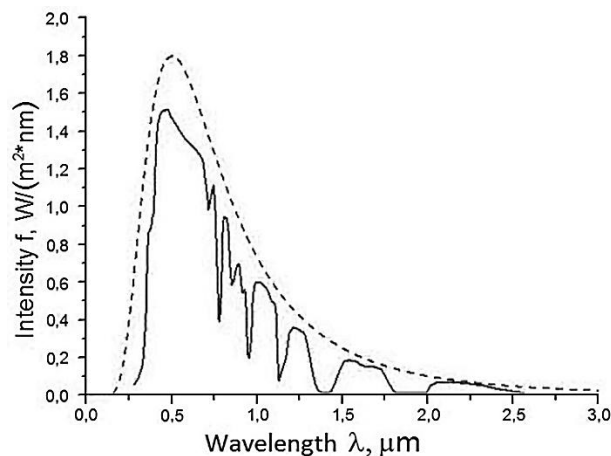


Fig. 2. A schematic showing the intensity of solar radiation at the Earth's surface [6] (solid line). The blackbody radiation spectrum ($T=5700$ K) is shown with a dashed line. Here we note that the impact of the atmosphere on this intensity is very significant, especially at small wavelengths.

EXPERIMENT

Let us observe the functioning of the greenhouse. We construct the experimental model taking into account the above-mentioned equations and carrying out optimizations according to them (Fig. 3). We also pay respect to our limited capabilities. During our experiment, the air temperature in the shade was approximately 5 °C, and the sky was cloudless. The greenhouse bottom was oriented perpendicularly to the sun rays.

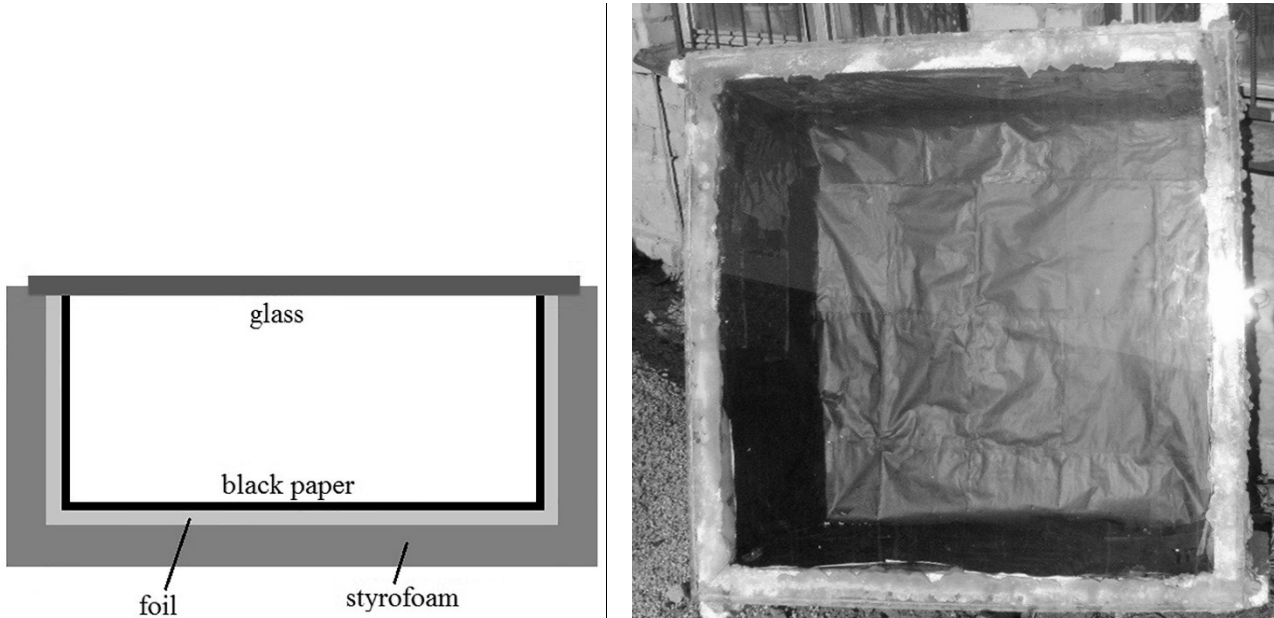


Fig. 3. Our experimental model (left). It is a rectangular box coated with styrofoam. The interior walls of the box are covered with aluminum foil and black paper. In our experiment, we use conventional window glass. Our greenhouse (right) constructed according to the schematic. The area of the bottom is just about 1 m². The wall thickness is 5 cm, the glass thickness is 4 mm.

RESULTS

During the operation of our experimental model, the majority of heat losses were caused by the styrofoam's and glass' heat conduction. The temperature in the greenhouse becomes constant due to the balance between the energy coming in from the Sun and the energy transferred to the environment. Gradually saturating (Fig. 4), the temperature in our experiment rose above 100 degrees. The maximum temperature we achieved was 111 °C.

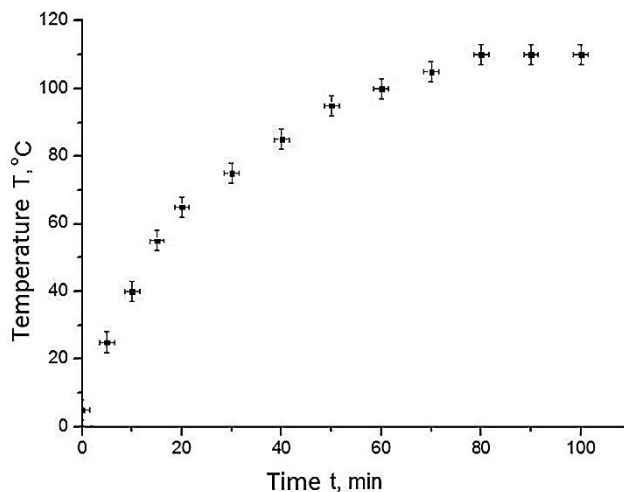


Fig. 4. Plot of greenhouse temperature versus time. The temperature increases and finally reaches saturation. The maximum temperature achieved in the experiment was 111 °C.

Let us verify the suitability of the proposed balance equations for description of the experiment. The bandwidth of the used glass in the visible range is about 87%, the surface albedo is about 0.05. The intensity of solar radiation at the Earth's surface is approximately 1.000 W/m², but is subjected to large temporal and spatial variations, depending on the weather conditions, the latitude, the altitude, the atmospheric pollution etc. We experimentally found temperature differences: 3 °C near the glass, 95 °C near the bottom, and 65 °C near the sidewalls. We also know that the thermal conductivity of styrofoam is 0.04 W/(m·K), that the thermal conductivity of the glass is 0.7 W/(m·K), the thickness of

the styrofoam layer is 5 cm, and that the thickness of the glass is 4 mm. We plug the available data into the calculation formulas and get the following result. $P_{\odot} \approx 830 \text{ J/s}$, $P_{em} + P_{cond} \approx 5 \text{ J/s} + 705 \text{ J/s} = 710 \text{ J/s}$ (Eq. 1). The discrepancy is about fifteen percent. However, this result confirms the applicability of such simplified theory.

DISCUSSION

Theoretical generalizations

In most ordinary garden greenhouses, the temperature increases mainly due to the glass or polyethylene film preventing air convection. Our experimental model also provides styrofoam insulation, which reduces losses caused by the thermal conductivity. However, the heating that results from this is relatively small. After the verification of the proposed principle, we use it to predict the outcome in other conditions. Our task is to reach the maximum temperature. Let us upgrade the model to minimize heat losses.

Separating the absorbing layer of the greenhouse from the shell, it is possible to eliminate direct heat transfer to the walls and to the bottom. To avoid the transmission of heat through the air inside the greenhouse, let us evacuate it. Now, the thermal conductivity losses are negligible. Only losses caused by the greenhouse's radiation-absorbing layer remain, and we cannot completely eliminate them because of the glass' transmission properties. We imagine these optimizations and present a model of an ideal greenhouse (Fig. 5).

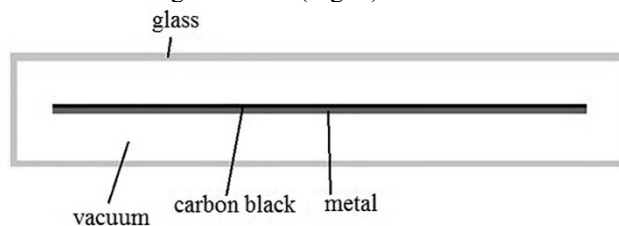


Fig. 5. A model of an ideal greenhouse.

It is a plate coated with carbon black, isolated from the environment, in which light penetrates through the glass. In this case, we are maximizing the temperature of the plate itself.

Of course, ideally, the greenhouse could be placed in orbit, where the intensity of solar radiation is not influenced by the atmosphere, and where heat losses via air convection and heat conductivity vanish. However, let us confine ourselves to Earthly conditions. Now we rewrite the initial equation of heat balance for the ideal greenhouse.

$$\int (1 - A) \cdot I_{\odot}(\lambda) \cdot k(\lambda) d\lambda = \int I_e(\lambda) \cdot k(\lambda) d\lambda \tag{5}$$

After reaching certain conditions, the temperature in this greenhouse will also become constant. The reason for the establishment of the balance is Wien's displacement. Initially the greenhouse's absorbing layer emits in the infrared range, in which the glass does not transmit. However, as the temperature rises, the emission spectrum shifts toward shorter wavelengths, where the glass becomes transparent. Then it reaches the state when the greenhouse emits as much energy as it consumes. That is, it sets the balance between the absorbed and the emitted energy per unit time, and the temperature reaches its maximum, ceasing to rise.

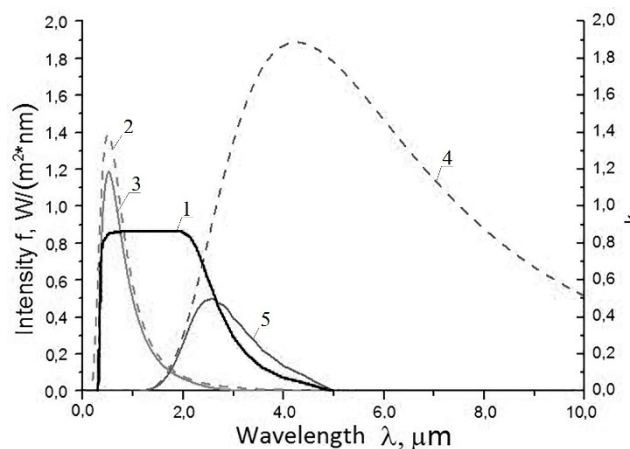


Fig. 6. Transmittance coefficient $k(\lambda)$ (1); incoming solar energy (2), absorbed solar energy (3); energy emitted by the heated surface (4), energy that passes through the glass and leaves the greenhouse (5). The incoming solar energy spectrum is simplified and corresponds to the blackbody radiation spectrum at the temperature at 5700 K (we also take into consideration the distance from the Sun). The radiation of the greenhouse's bottom corresponds to a blackbody heated up to 680 K. In this case the area under the line (3) equals the area under the line (5), that means the heat balance.

What is the temperature, at which the heat balance will be achieved? Let us describe the spectrum of the greenhouse bottom's radiation that penetrates through the glass (Fig. 6). It is not difficult to verify that the integral of this function equals 830 W/m² when the temperature of the plate is approximately 680 K. So, with the conditions in our experiment, the temperature that we could ideally achieve is 680 K.

It should be noted that in the current model, the key role in the greenhouse's operation is played by the glass. Its transmittance area determines the temperature that can be reached by an ideal greenhouse. For example, if the transmission coefficient is the same for all wavelengths ($k(\lambda) = const$), the greenhouse can only be heated to 370 K (Fig. 7). Our task is to find a glass transmission spectrum that would allow the greenhouse to reach the maximum possible temperature.

Let us consider a new model: one that includes glass that transmits in a very narrow range, localized at some wavelength (Fig. 8).

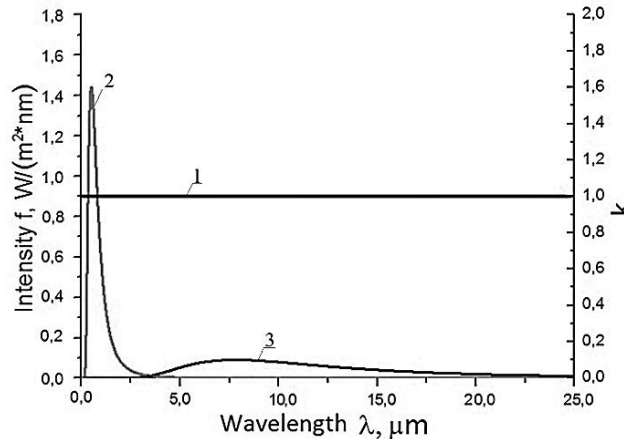


Fig. 7. (left) The transmittance of the glass $k(\lambda)$ (1), sun (2) and greenhouse (3) radiation spectra.

When $k(\lambda) = const$, the greenhouse can only be heated up to about 370 K only. This picture shows that if there is no difference in the glass transmittance for visible and infrared radiation, we get lower temperature. That is, the prevention of the escape of the heated air is not the only important function of the glass.

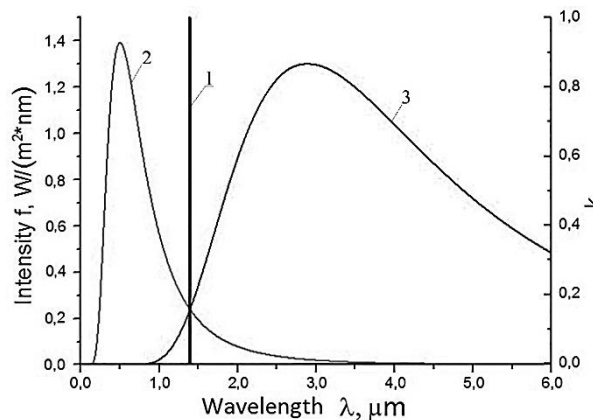


Fig. 8. (right) Transmission $k(\lambda)$ localized at a specific wavelength (1), sun (2) and greenhouse bottom (3) radiation spectra. The intersection point of the two spectrum curves reaches this wavelength where the transmission of the ideal glass is localized. This is the equilibrium between the absorbed energy and the emitted energy.

In this case, the temperature in the greenhouse will increase until the intersection of the Sun's radiation spectrum curve (taking into account the distance to the Earth) and the greenhouse's radiation spectrum curve reaches this wavelength (in other words, until the two objects emit the same amount of energy at this wavelength). Then the balance will be achieved, and the heating will stop. When the intersection point shifts to shorter wavelengths, we get a higher final temperature. To simplify the calculations, we will not take into account the impact of the Earth atmosphere. If the Sun and the greenhouse emit according to Planck's law, we obtain the following equation:

$$\frac{2\pi hc^2}{\lambda^5 \left(e^{\frac{hc}{\lambda kT}} - 1 \right)} = \frac{r^2}{R^2} \frac{2\pi hc^2}{\lambda^5 \left(e^{\frac{hc}{\lambda kT_0}} - 1 \right)}, \tag{6}$$

where r is radius of the Sun, R is the distance from the Sun, T_0 is temperature of the Sun, and T is temperature of the

plate in the greenhouse. From this, we get:

$$T = \frac{hc}{\lambda k \ln \left(\frac{R^2}{r^2} \left(e^{\frac{hc}{\lambda k T_0}} - 1 \right) + 1 \right)} \quad (7)$$

This dependence of the temperature in the greenhouse on the wavelength at which the transmission of the glass is localized is shown on the graph (Fig. 9). For sufficiently small λ we get $T \rightarrow T_0$, and for sufficiently big λ we get $T \rightarrow T_0 \frac{r^2}{R^2}$. So, in the ideal greenhouse model, isolated from all heat losses besides radiation, with a delta-function glass transmission localized at a wavelength of about one nanometer, neglecting the influence of the atmosphere, it is theoretically possible to reach solar temperatures. Higher temperatures cannot be achieved because of the Second Law of Thermodynamics.

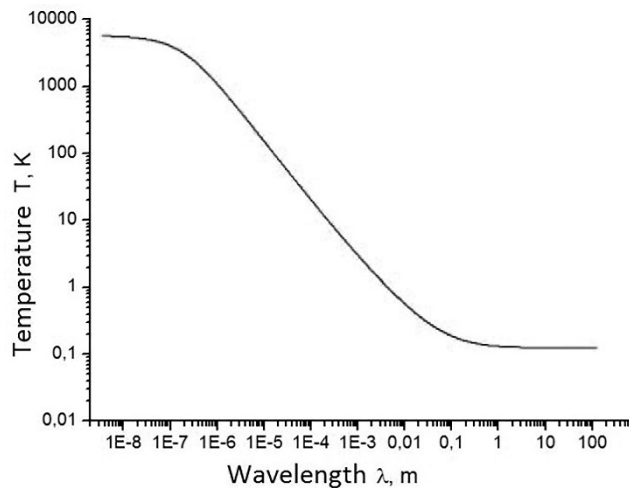


Fig. 9. Dependence of the greenhouse temperature on the wavelength at which the glass transmission spectrum is localized (logarithmic scale). For sufficiently small wavelengths, the temperature in the ideal greenhouse tends to reach solar values.

In real life, the impact of the atmosphere and other factors is so significant that we cannot neglect them. The Sun’s radiation spectrum is too different from the blackbody, especially in the short wave range that is considered in the case of maximum temperature. That is why in reality it is impossible to obtain temperatures close to solar values. For the same reasons, it is also impossible to find this maximum temperature analytically. We can only try to estimate its possible value, assuming that at least the plate in the greenhouse radiates as a blackbody (Fig. 10).

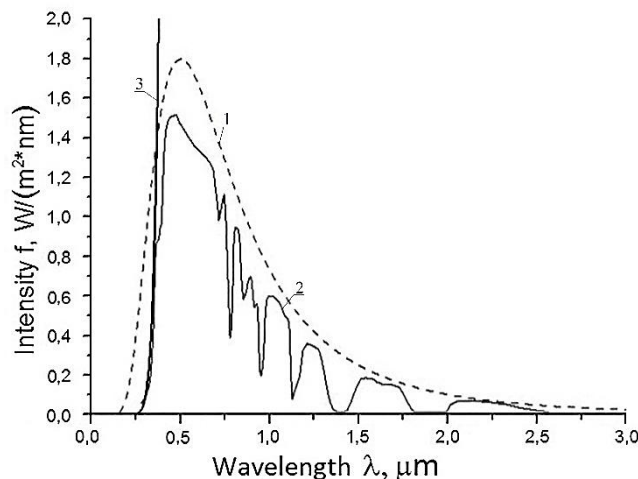


Fig. 10. Plank’s curve for the Sun (1), the actual solar radiation spectrum (2) and the tangent curve (3) of the blackbody radiation spectrum ($T \approx 2200$ K).

As the Sun’s atmosphere-modified radiation spectrum differs from a blackbody, the considered intersection point cannot reach an arbitrarily small wavelength. That is why in this case the temperature can only approach about 2000 K – quite below the solar value.

Dead-ends

As has been mentioned above, the influence of the heat conduction of the greenhouse walls and air convection is practically very significant. The consideration of these factors greatly complicates the model and makes it much more

interesting and comprehensive. Unfortunately, this is beyond the scope of the posed problem. We also can not get the transmittance spectrum of the glass from first principles at the molecular level. There are many kinds of glass, each with their own transmission spectrum, (see [4]), but there is no way to get glass with arbitrary desired properties. It also should be mentioned that our reasoning is done under the assumption that the window reflects the untransmitted radiation. What happens if the window absorbs it instead? Its properties may change, which is a possibility we haven't considered. From equations (2) and (3) we see that the contribution of the surface albedo is the same as the contribution of the coefficient k . In our model, we treated the albedo as a constant. However, in reality, albedo depends on the wavelength and affects the result in the same way as the coefficient k , whose influence is investigated in the paper. Therefore, considerations in this case are similar. We can also consider an idealized model for albedo, but it is useless because it is too far from reality. It serves only to understand the dependence of the temperature on various parameters and to find the generalized abstract principles. Thus, many ways to control the temperature in the greenhouse are not covered by our solution of the problem. This paper is only a qualitative, idealized overview of the greenhouse effect principle.

Application

How can this result be applied? There are devices (called solar collectors) operating on the same principle that are used to accumulate solar energy. Unlike solar cells that produce electricity directly, a solar collector heats a heat-transferring material. There are some widespread types of collectors that are used for heating air and water: flat and vacuum solar collectors. When there is no heat intake (the stagnation case), the flat plate collectors can heat water up to 190-210 °C. In vacuum solar collectors the heat transfer medium can be heated up to 250-300 °C. Reflectors, different heat transfer agents, and Sun tracking devices are used to increase the efficiency of these installations. House heating and hot water supply can be carried out with the help of collectors. Collectors are easy to use, environmentally friendly and present a promising alternative energy source [5].

CONCLUSIONS

In our investigation, we have studied the principle of the greenhouse effect based on the dependence of glass transmissibility on wavelength. Having done estimations of heat balance in the greenhouse, we conducted an experiment, traced the change of temperature with time and obtained a maximum temperature of 111 °C. Then we proposed an ideal model that eliminates heat losses by heat conductivity and found the maximum temperature in two idealized cases. In the case of ordinary window glass and an ideal solar radiation spectrum, the maximum temperature is about 680 K. For the real solar radiation spectrum and ideal glass, whose transmittance spectrum is localized at some wavelength, the result is about 2200 K. We also noted that in solar collectors, which are used to convert solar energy into heat, it is possible to obtain a stagnation temperature of 300 °C, which is not too far from our idealized estimation.

Acknowledgements

The work was done in preparation for the Ukrainian Physicists' Tournament for University Students. I express my sincere gratitude for the help provided by our team supervisor Oleksiy Golubov. I am also very grateful to Bohdan Bidenko, Daria Raspopova, Mykyta Kizilov, Maria Sklyarova as well as to our entire team.

REFERENCES

1. Crawford E. Arrhenius' 1896 Model of the Greenhouse Effect in Context // *Ambio*. - 1997. - Vol. 26. - No. 1. - P.6-11.
2. Wood R.W. Note on the theory of the greenhouse // *Philosophical Magazine Series 6*. - 1909. - P.319-320.
3. Fourier J. Mémoire sur les températures du globe terrestre et des espaces planétaires // *Mémoires de l'Académie royale des sciences de l'Institut de France*. - 1827. - Vol. VII. - P.585-587.
4. Borulko V., Borulko P, Dubinin A., Marichev A., Popovich S. Glasses absorbing the infrared part of the spectrum (heat absorbing glasses) // *The journal Windows. Doors. Stained-glass windows*. - 2006. - No.5.
5. Zubkova E. Expensive collector for free energy // *Energyland.info*. [Online] Available: <http://www.energyland.info/analytic-show-90573.htm>. - 2012.
6. Iqbal M. Introduction to solar radiation. - Academic Press, 1983. - 136p.

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, 2017

(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 1000 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

Titles of journals, articles and author names in references should be given in Roman script. 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 4 Номер 2

EAST EUROPEAN JOURNAL OF PHYSICS

Volume 4 Number 2

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 7.04.2017. Формат 60×84 /8. Папір офсетний.
Друк ризографічний.

Ум. друк. арк. 13. Обл.-вид. арк. 10,4
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