

Volume 5 • Number 3 • 2018

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 5 · Number 3

2018

# 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 (June 25, 2018, Protocol No. 7). EEJP registered by the order of Ministry of Education of Ukraine № 747 of 07.13.2015, and 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

Hirnyk 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](mailto: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

# East European Journal of Physics

Volume 5

Number 3

2018

---

## ORIGINAL PAPERS

**On Description of Thermodynamic Properties of Crystals in the Approximation of an Isotropic Medium. The Two-Parametric Debye Model** 4  
Yu.M. Poluektov

**Longitudinal-Flexural Self-Sustained Vibrations of Nanotube Conveying Fluid** 13  
K. Avramov

**About the Informative Parameters of Michelson Interferometers with the Division of Amplitude and the Wave Front** 24  
V.M. Svishch

**Structure and Phase Composition of W-Si Multilayer X-Ray Mirrors** 32  
Yu.P. Pershyn, I.G. Shipkova, O.Yu. Devizenko, V.V. Mamon, V.S. Chumak, V.V. Kondratenko

**Scintillation Monocrystals of KDP:Tl and KDP:Ce Doped by Thallium and Cerium for Selective Detection of Fast Neutrons** 45  
A.P. Voronov, S.V. Naydenov, I.M. Pritula, G.M. Onyshchenko, A.F. Shchus', I.I. Yakymenko

**Investigation of Mechanical Properties of Polyimide Films Under the Influence of Laboratory-Simulated Space Factors** 53  
V.A. Lototskaya, L.F. Yakovenko, E.N. Aleksenko, V.A. Velichko, I.P. Zaritskiy, V.V. Abraimov, Wen Zhu Shao, Liu Hai

**Electrolytic Plasma Polishing of Copper** 61  
O.V. Mihal, O.V. Moroz, R.I. Starovoytov, I.V. Buriak

**Sm-Co Based Magnetic System for 10 MeV Technological Electron Accelerator Lu-10M** 68  
V.A. Bovda, A.M. Bovda, I.S. Guk, S.G. Kononenko, V.N. Lyashchenko, A.O. Mytsykov, L.V. Onischenko

**Determination of Thermodynamic Quantities of Binary Metal Systems with Low Solubility of Components in the Solid  $\alpha$ -Phase** 75  
A.P. Shcherban, O.A. Datsenko

## HISTORY OF SCIENCE

**It's worth remembering: "This Never Was Not in the USSR". - Ukraine, Kharkov, UFTI (Continuation: Beginning at No. 1 (2018))** 82  
A. Tan'shyna

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

## ON DESCRIPTION OF THERMODYNAMIC PROPERTIES OF CRYSTALS IN THE APPROXIMATION OF AN ISOTROPIC MEDIUM. THE TWO-PARAMETRIC DEBYE MODEL

**Yu.M. Poluektov<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"  
1, Akademicheskaya Str., 61108 Kharkov, Ukraine*

<sup>2</sup>*Kharkov V.N. Karazin National University  
Sq. Svobody 4, Kharkov, 61022, Ukraine*

E-mail: [yuripoluektov@kipt.kharkov.ua](mailto:yuripoluektov@kipt.kharkov.ua), <https://orcid.org/0000-0002-3207-3226>

Received June 18, 2018; accepted July 26, 2018

When analyzing thermodynamic and kinetic properties of crystals whose anisotropy is not large and the considered effects do not relate to the existence of singled-out directions in crystals, one may use a more simple model of an isotropic medium with a good accuracy, after having chosen its parameters in an optimal way. Based on the quantum mechanical description it is shown that the method of approximation of the moduli of elasticity of a crystal by the model of an isotropic medium, proposed earlier in [2], follows from the requirement of the minimal difference between the free energies of a crystal and an approximating isotropic medium. The two-parametric Debye model is formulated, which, in contrast to the standard model where the average speed of phonons is introduced, takes into account the existence in an isotropic medium of both longitudinal and transverse phonons. The proposed model contains, except the Debye energy, an additional dimensionless parameter and, consequently, the law of corresponding states for the heat capacity being characteristic of the standard model does not hold. With taking account of the two phonon branches the structure of the density of phonon states proves to be more complex as compared to the standard model and has a singularity that resembles Van Hove singularities in real crystals. As an example, an application of the two-parametric Debye theory to such crystals of the cubic system as tungsten, copper, lead is considered. It is shown that the calculation of the low-temperature heat capacity of these crystals by means of the approximated moduli of elasticity within the framework of the two-parametric model leads to a considerably better agreement with experiment than in the case of the standard Debye model.

**KEY WORDS:** moduli of elasticity, phonon, free energy, heat capacity, Debye energy

### ПРО ОПИС ТЕРМОДИНАМІЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ КРИСТАЛІВ У НАБЛИЖЕННІ ІЗОТРОПНОГО СЕРЕДОВИЩА. ДВОПАРАМЕТРИЧНА МОДЕЛЬ ДЕБАЯ

**Ю.М. Полуктов<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>*Національний науковий центр "Харківський фізико-технічний інститут"  
61108, вул. Академічна, 1, Харків, Україна*

<sup>2</sup>*Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна  
пл. Свободи, 4, м Харків, 61022, Україна*

При аналізі термодинамічних і кінетичних властивостей кристалів, анізотропія яких не є великою, а ефекти що розглядаються не пов'язані з існуванням у кристалах виділених напрямків, можна з хорошою точністю користуватися більш простою моделлю ізотропного середовища, підібравши її параметри оптимальним чином. На основі квантово-механічного розгляду показано, що метод апроксимації модулів пружності кристала моделлю ізотропного середовища, запропонований раніше в [2], випливає з вимоги мінімальної різниці між вільними енергіями кристала і апроксимуючого ізотропного середовища. Сформульовано двохпараметричну модель Дебая, яка, на відміну від стандартної моделі, де вводиться середня швидкість фонових, враховує існування в ізотропному середовищі як поздовжніх, так і поперечних фонових. У запропонованій моделі крім енергії Дебая існує додатковий безрозмірний параметр  $i$ , внаслідок цього, закон відповідних станів для теплоємності, характерний для стандартної моделі, не виконується. При урахуванні двох фонових гілок структура густини фонових станів виявляється складнішою, ніж в стандартній моделі і має особливість, що нагадує особливості Ван Хофа в реальних кристалах. Як приклад розглянуто застосування двохпараметричної теорії Дебая до таких кристалів кубічної сингонії, як вольфрам, мідь і свинець. Показано, що розрахунок низькотемпературної теплоємності цих кристалів за допомогою апроксимованих модулів пружності в рамках двохпараметричної моделі призводить до значно кращої згоди з експериментом, ніж у разі стандартної моделі Дебая.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** модулі пружності, фонон, вільна енергія, теплоємність, енергія Дебая

### ОБ ОПИСАНИИ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ СВОЙСТВ КРИСТАЛЛОВ В ПРИБЛИЖЕНИИ ИЗОТРОПНОЙ СРЕДЫ. ДВУХПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ДЕБАЯ

**Ю.М. Полуктов<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>*Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт"  
61108, Академическая, 1, Харьков, Украина*

<sup>2</sup>*Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина  
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина*

При анализе термодинамических и кинетических свойств кристаллов, анизотропия которых не велика, а рассматриваемые эффекты не связаны с существованием в кристаллах выделенных направлений, можно с хорошей точностью пользоваться более простой моделью изотропной среды, подобрав её параметры оптимальным образом. На основе квантово-механического рассмотрения показано, что метод аппроксимации модулей упругости кристалла моделью изотропной среды, предложенный ранее в [2], следует из требования минимальной разности между свободными энергиями кристалла и аппроксимирующей изотропной среды.

Сформулирована двухпараметрическая модель Дебая, которая, в отличие от стандартной модели, где вводится средняя скорость фононов, учитывает существование в изотропной среде как продольных, так и поперечных фононов. В предложенной модели помимо энергии Дебая имеется дополнительный безразмерный параметр  $\mu$ , вследствие этого, закон соответственных состояний для теплоёмкости, характерный для стандартной модели, не выполняется. При учёте двух фононных ветвей структура плотности фононных состояний оказывается сложнее, чем в стандартной модели и имеет особенность, напоминающую особенности Ван Хофа в реальных кристаллах. В качестве примера рассмотрено применение двухпараметрической теории Дебая к таким кристаллам кубической сингонии, как вольфрам, медь и свинец. Показано, что расчет низкотемпературной теплоёмкости этих кристаллов с помощью аппроксимированных модулей упругости в рамках двухпараметрической модели приводит к значительно лучшему согласию с экспериментом, чем в случае стандартной модели Дебая.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** модули упругости, фонон, свободная энергия, теплоёмкость, энергия Дебая

Упругие свойства изотропной среды характеризуются двумя модулями упругости, например, коэффициентами Ламэ  $\lambda$  и  $\mu$  [1]. Кристалл является анизотропной средой, в силу чего его упругие свойства отличаются от свойств изотропного тела и характеризуются большим числом параметров. Если же величина анизотропии достаточно мала, то, очевидно, что свойства кристалла будут незначительно отличаться от свойств изотропной среды и анализ свойств кристалла можно заменить более простым анализом свойств модельной изотропной среды, подобрав её параметры оптимальным образом. В работе [2] модули упругости аппроксимирующего изотропного тела предложено находить из условия минимума величины

$$G \equiv \left( \lambda_{iklm} - \lambda_{iklm}^{(0)} \right)^2, \quad (1)$$

где  $\lambda_{iklm}$  - тензор модулей упругости кристалла, а

$$\lambda_{iklm}^{(0)} = \lambda \delta_{ik} \delta_{lm} + \mu (\delta_{ii} \delta_{km} + \delta_{im} \delta_{kl}) \quad (2)$$

- тензор модулей упругости изотропной среды. Условия экстремума  $\partial G / \partial \lambda = \partial G / \partial \mu = 0$  дают связь аппроксимирующих коэффициентов Ламэ с инвариантами тензора модулей упругости кристалла:

$$\lambda = \frac{1}{15} (2\lambda_{iikk} - \lambda_{ikik}), \quad \mu = \frac{1}{30} (3\lambda_{ikik} - \lambda_{iikk}). \quad (3)$$

Данная аппроксимация вполне разумна для качественного, а во многих случаях и количественного, анализа интегральных свойств кристалла и тех эффектов, которые не связаны с существованием в кристаллах выделенных направлений и могут быть описаны в приближении изотропной среды. В [2] такой подход был развит для теории упругих волн в кристаллах. Аналогичный подход может быть использован и при учете нелинейных эффектов в кристаллах, например, для упрощения расчётов матричных элементов взаимодействия фононов в кристаллах любой сингонии [3,4]. В данной работе ограничимся рамками линейной теории упругости.

Условие (1) удобно тем, что приводит к системе линейных алгебраических уравнений, однако в принципе возможны и другие критерии близости тензоров модулей упругости реальной и модельной сред, содержащие, например, модуль разности в более высокой степени. Естественно потребовать, чтобы аппроксимирующие модули упругости выбирались так, чтобы свободные энергии реальной и модельной сред были максимально близки.

Цель данной работы показать на основе квантового рассмотрения, что модули упругости изотропной модельной среды, полученные из условия экстремума величины  $G$  (1), действительно приводят к свободной энергии, максимально близкой к свободной энергии кристалла.

Для описания термодинамических свойств твердых тел в приближении изотропной среды широко используется известная модель Дебая [5]. В стандартной модели Дебая, которая формулируется для изотропной среды, делается дальнейшее упрощение, состоящее в том, что изотропная среда вместо двух параметров, характеризуется единственным параметром – средней скоростью фононов и соответствующей ей энергией. Однако такое упрощение не является необходимым и представляется естественным формулировать теорию для изотропной среды с двумя модулями упругости  $\lambda$  и  $\mu$ , соответственно, с двумя типами фононов – продольными и поперечными. Очевидно, что такая теория не может быть менее точной, чем модель Дебая в стандартной формулировке [5], и, возможно, позволит описать некоторые более тонкие эффекты. Кроме того, пользуясь аппроксимацией модулей упругости (3), появляется возможность применить модель к расчету кристаллов различных сингоний. Таким образом, еще одной целью данной работы является формулирование модели Дебая, в которой учтено существование в изотропной среде продольных и поперечных фононов. В качестве примера рассмотрено применение предложенной двухпараметрической теории Дебая к кристаллам кубической сингонии. Найдены аппроксимирующие модули упругости для вольфрама, меди и свинца. Расчет их низкотемпературных теплоёмкостей с использованием рассчитанных модулей показывает, что двухпараметрическая модель описывает термодинамические свойства с гораздо лучшим приближением, чем стандартная модель Дебая.

### ОПТИМАЛЬНАЯ АППРОКСИМАЦИЯ УПРУГИХ СВОЙСТВ КРИСТАЛЛА МОДЕЛЬЮ ИЗОТРОПНОЙ СРЕДЫ

Плотность гамильтониана кристалла, как упругой среды, даётся выражением

$$H(\mathbf{r}) = \frac{\pi_a(\mathbf{r})^2}{2\rho} + \frac{1}{2} \lambda_{aijb} u_{ai}(\mathbf{r}) u_{bj}(\mathbf{r}), \quad (4)$$

где тензор деформации в линейном приближении имеет вид

$$u_{ij} = \frac{1}{2}(\nabla_j u_i + \nabla_i u_j), \quad (5)$$

$u_i(\mathbf{r})$  - вектор смещения,  $\pi_a(\mathbf{r}) = \rho \dot{u}_a(\mathbf{r})$  - канонический импульс,  $\rho$  - плотность,  $\lambda_{aijb}$  - тензор модулей упругости кристалла. В (4) и в дальнейшем используется соглашение о суммировании по повторяющимся индексам.

Попытаемся аппроксимировать гамильтониан (4), содержащий модули упругости реального кристалла модельной изотропной средой, выбрав её гамильтониан в виде

$$H_S(\mathbf{r}) = \frac{\pi_a(\mathbf{r})^2}{2\rho} + \frac{1}{2} \tilde{\lambda}_{aijb} u_{ai}(\mathbf{r}) u_{bj}(\mathbf{r}) + \varepsilon_0, \quad (6)$$

где

$$\tilde{\lambda}_{aijb} = \tilde{\lambda} \delta_{ai} \delta_{bj} + \tilde{\mu} (\delta_{ab} \delta_{ij} + \delta_{aj} \delta_{bi}), \quad (7)$$

а коэффициенты Ламэ  $\tilde{\lambda}, \tilde{\mu}$  будем рассматривать как параметры, определяемые из условия наилучшей аппроксимации гамильтониана кристалла (4) гамильтонианом изотропной среды (6), которое будет введено ниже. Здесь и дальше модули упругости аппроксимирующей изотропной среды будем обозначать со значком «тильда» вверху. Гамильтониан (6) содержит плотность энергии  $\varepsilon_0$ , которая обусловлена тем, что замена точного тензора упругости  $\lambda_{aijb}$  приближенным изотропным  $\tilde{\lambda}_{aijb}$  может приводить, вообще говоря, к изменению и основного недеформированного состояния кристалла. Полный исходный гамильтониан  $H = \int H(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$  может быть представлен в виде  $H = H_S + H_C$ , где выделен полный аппроксимирующий гамильтониан:

$$H_S = \int \left[ \frac{\pi_a(\mathbf{r})^2}{2\rho} + \frac{1}{2} \tilde{\lambda}_{aijb} u_{ai}(\mathbf{r}) u_{bj}(\mathbf{r}) \right] d\mathbf{r} + V \varepsilon_0, \quad (8)$$

а корреляционный гамильтониан

$$H_C = \frac{1}{2} \int [(\lambda_{aijb} - \tilde{\lambda}_{aijb}) \nabla_i u_a \nabla_j u_b] d\mathbf{r} - V \varepsilon_0 \quad (9)$$

характеризует различие между точным и аппроксимирующим гамильтонианом.

При квантовом описании, которым будем пользоваться, вектор деформации  $u_a(\mathbf{r})$  и канонический импульс  $\pi_a(\mathbf{r})$  следует рассматривать как операторы, для которых справедливы известные соотношения коммутации

$$\begin{aligned} \pi_a(\mathbf{r}) u_b(\mathbf{r}') - u_b(\mathbf{r}') \pi_a(\mathbf{r}) &= -i\hbar \delta_{ab} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \\ u_a(\mathbf{r}) u_b(\mathbf{r}') - u_b(\mathbf{r}') u_a(\mathbf{r}) &= 0, \quad \pi_a(\mathbf{r}) \pi_b(\mathbf{r}') - \pi_b(\mathbf{r}') \pi_a(\mathbf{r}) = 0. \end{aligned} \quad (10)$$

Воспользуемся разложением полевых операторов

$$u_a(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}, \alpha} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho\omega(\mathbf{k}, \alpha)}} e_a(\mathbf{k}, \alpha) (b_{\mathbf{k}\alpha} + b_{-\mathbf{k}\alpha}^+) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}, \quad \pi_a(\mathbf{r}) = -\frac{i}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}, \alpha} \sqrt{\frac{\rho\hbar\omega(\mathbf{k}, \alpha)}{2}} e_a(\mathbf{k}, \alpha) (b_{\mathbf{k}\alpha} - b_{-\mathbf{k}\alpha}^+) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}, \quad (11)$$

где  $\mathbf{e}(\mathbf{k}, \alpha)$  - комплексные векторы поляризации ( $\alpha = 1, 2, 3$ ), такие что  $\mathbf{e}(-\mathbf{k}, \alpha) = \mathbf{e}^*(\mathbf{k}, \alpha)$ , для которых выполнены условия ортогональности и полноты

$$\mathbf{e}(\mathbf{k}, \alpha) \mathbf{e}^*(\mathbf{k}, \alpha') = \delta_{\alpha\alpha'}, \quad \sum_{\alpha} e_i^*(\mathbf{k}, \alpha) e_j(\mathbf{k}, \alpha) = \delta_{ij}. \quad (12)$$

Операторы рождения  $b_{\mathbf{k}\alpha}^+$  и уничтожения  $b_{\mathbf{k}\alpha}$  фононов подчиняются обычным условиям коммутации:

$$[b_{\mathbf{k}\alpha}, b_{\mathbf{k}'\alpha'}^+] = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\alpha\alpha'}, \quad [b_{\mathbf{k}\alpha}, b_{\mathbf{k}'\alpha'}] = [b_{\mathbf{k}\alpha}^+, b_{\mathbf{k}'\alpha'}^+] = 0.$$

При описании изотропной среды один из векторов поляризации удобно выбрать вдоль волнового вектора:  $\mathbf{e}(\mathbf{k}, 3) = i(\mathbf{k}/k) = i\mathbf{n}$ . Два других вектора поляризации с  $\alpha = 1, 2$  лежат в плоскости перпендикулярной волновому вектору. С учетом этого аппроксимирующий гамильтониан (8) может быть записан диагональной форме

$$H_S = \sum_{\mathbf{k}} (2\hbar\omega_{\mathbf{k}t} b_{\mathbf{k}t}^+ b_{\mathbf{k}t} + \hbar\omega_{\mathbf{k}l} b_{\mathbf{k}l}^+ b_{\mathbf{k}l}) + \sum_{\mathbf{k}} \left( \hbar\omega_{\mathbf{k}t} + \frac{1}{2} \hbar\omega_{\mathbf{k}l} \right) + V \varepsilon_0. \quad (13)$$

Здесь фононы с поперечной поляризацией с  $\alpha = 1, 2$  обозначены одним индексом  $t$ , а фононы с продольной поляризацией с  $\alpha = 3$  - индексом  $l$ . Также учтено, что поперечные фононы имеют две степени свободы. В

результате приведения гамильтониана к диагональной форме (13), находим законы дисперсии фононов  $\omega_{kt} = c_t k$ ,  $\omega_{kl} = c_l k$ , где скорости поперечных и продольных фононов даются известными выражениями [1]:

$$c_t = \sqrt{\frac{\tilde{\mu}}{\rho}}, \quad c_l = \sqrt{\frac{\tilde{\lambda} + 2\tilde{\mu}}{\rho}}. \quad (14)$$

В дальнейшем вычисления средних величин будем проводить с помощью статистического оператора

$$\hat{\rho} = \exp \beta (F - H_S), \quad (15)$$

где  $\beta = 1/T$  - обратная температура. Условие нормировки  $\text{Sp} \hat{\rho} = 1$  приводит к формуле для свободной энергии в модели самосогласованного поля

$$F = V \varepsilon_0 + \sum_k \left( \hbar \omega_{kt} + \frac{1}{2} \hbar \omega_{kl} \right) + 2T \sum_k \ln(1 - e^{-\beta \hbar \omega_{kt}}) + T \sum_k \ln(1 - e^{-\beta \hbar \omega_{kl}}). \quad (16)$$

Энергия недеформированного состояния  $\varepsilon_0$  в такой модели находится из условия равенства средних для точного и аппроксимирующего гамильтонианов  $\langle H \rangle = \langle H_S \rangle$ , или, что эквивалентно, из условия  $\langle H_C \rangle = 0$ . Это дает

$$\varepsilon_0 = \frac{1}{2V} \int [(\lambda_{aibj} - \tilde{\lambda}_{aibj}) \langle \nabla_i u_a \nabla_j u_b \rangle] dr. \quad (17)$$

Вычисляя среднее в (17) с помощью статистического оператора (15), приходим к следующей формуле

$$\varepsilon_0 = \frac{\hbar}{4\rho V} (\lambda_{aibj} - \tilde{\lambda}_{aibj}) \sum_k k_i k_j [A_{kt} \delta_{ab} + (A_{kl} - A_{kt}) n_a n_b], \quad (18)$$

где величины

$$A_{kt} = \frac{1 + 2f_{kt}}{\omega_{kt}}, \quad A_{kl} = \frac{1 + 2f_{kl}}{\omega_{kl}} \quad (19)$$

выражаются через функции распределения продольных  $f_{kl} = [\exp \beta \hbar \omega_{kl} - 1]^{-1}$  и поперечных  $f_{kt} = [\exp \beta \hbar \omega_{kt} - 1]^{-1}$  фононов. Входящие в (18) суммы по волновым векторам, переходя от суммирования к интегрированию и интегрируя по углам, можно представить в виде

$$\sum_k k_i k_j A_{kt} = \frac{V}{6\pi^2} \delta_{ij} I_t, \quad \sum_k k_i k_j n_a n_b (A_{kl} - A_{kt}) = \frac{V}{30\pi^2} (\delta_{ij} \delta_{ab} + \delta_{ia} \delta_{jb} + \delta_{ib} \delta_{ja}) (I_t - I_l), \quad (20)$$

где

$$I_t = \int_0^{k_D} dk k^4 \frac{(1 + 2f_{kt})}{\omega_{kt}} = \frac{k_D^4}{4c_t} \Phi\left(\frac{\Theta_t}{T}\right), \quad I_l = \int_0^{k_D} dk k^4 \frac{(1 + 2f_{kl})}{\omega_{kl}} = \frac{k_D^4}{4c_l} \Phi\left(\frac{\Theta_l}{T}\right). \quad (21)$$

Здесь  $\Theta_t = \hbar c_t k_D$ ,  $\Theta_l = \hbar c_l k_D$  - энергии Дебая, определённые через скорости поперечных и продольных фононов,  $k_D = (6\pi^2 N/V)^{1/3}$  - волновое число Дебая,  $N$  - число частиц. В (21) определена функция

$$\Phi(x) = 1 + (8/3x)D(x), \quad D(x) = \frac{3}{x^3} \int_0^x \frac{z^3 dz}{e^z - 1}. \quad (22)$$

В результате находим

$$\varepsilon_0 = \frac{3NT}{16V} \left[ \left( \frac{\lambda_t}{x_t} - x_t \right) \Phi(x_t) + 2 \left( \frac{\lambda_l}{x_l} - x_l \right) \Phi(x_l) \right], \quad (23)$$

где для краткости введены обозначения:

$$x_t \equiv \frac{\Theta_t}{T} = \frac{\hbar c_t k_D}{T}, \quad x_l \equiv \frac{\Theta_l}{T} = \frac{\hbar c_l k_D}{T}, \quad (24)$$

$$\lambda_t \equiv \frac{\hbar^2 k_D^2}{15\rho T^2} (2\lambda_B + \lambda_A), \quad \lambda_l \equiv \frac{\hbar^2 k_D^2}{30\rho T^2} (3\lambda_B - \lambda_A).$$

Здесь  $\lambda_A \equiv \lambda_{iaa}$ ,  $\lambda_B \equiv \lambda_{ata}$  - инварианты тензора модулей упругости кристалла. В результате, с учетом (16), получим свободную энергию, как функцию температуры, объёма, числа частиц и двух параметров  $x_t, x_l$ :

$$F = \frac{3NT}{16} \left[ \Phi(x_t) \left( \frac{\lambda_t}{x_t} - x_t \right) + 2\Phi(x_l) \left( \frac{\lambda_l}{x_l} - x_l \right) \right] + \frac{3NT}{8} (x_l + 2x_t) + \frac{NT}{3} [3\ln(1 - e^{-x_t}) - D(x_t)] + \frac{2NT}{3} [3\ln(1 - e^{-x_l}) - D(x_l)]. \quad (25)$$

При произвольных значениях параметров  $x_l, x_t$  свободная энергия (25) описывает систему в состоянии с неполным термодинамическим равновесием. Равновесные значения этих параметров, а, следовательно, и оптимальные величины коэффициентов упругости модельной изотропной среды  $\tilde{\lambda}$  и  $\tilde{\mu}$ , следует находить из условий экстремума свободной энергии (25):

$$\frac{\partial F}{\partial x_l} = 0, \quad \frac{\partial F}{\partial x_t} = 0. \quad (26)$$

В результате получим уравнения:

$$\left( \frac{\lambda_\alpha}{x_\alpha^2} - 1 \right) [x_\alpha \Phi'(x_\alpha) - \Phi(x_\alpha)] = 0, \quad (27)$$

где  $\alpha = l, t$ . Функция во вторых скобках в области своего определения не обращается в нуль, так что должно быть  $x_\alpha^2 = \lambda_\alpha$  или более подробно:

$$c_l^2 = \frac{1}{15\rho}(2\lambda_B + \lambda_A), \quad c_t^2 = \frac{1}{30\rho}(3\lambda_B - \lambda_A). \quad (28)$$

Отсюда, согласно (14), формулы для коэффициентов Ламэ изотропной среды, моделирующей кристалл, имеют вид

$$\tilde{\lambda} = \frac{1}{15}(2\lambda_A - \lambda_B), \quad \tilde{\mu} = \frac{1}{30}(3\lambda_B - \lambda_A). \quad (29)$$

Эти формулы совпадают с формулами (3), полученными на основе иного критерия, введенного в [2]. Как было здесь также показано, подобная аппроксимация оказывается справедливой при произвольной температуре. Приведем аппроксимирующие формулы для модуля всестороннего сжатия  $\tilde{K}$ , модуля Юнга  $\tilde{E}$  и коэффициента Пуассона  $\tilde{\sigma}$ :

$$\tilde{K} = \frac{1}{9}\lambda_A, \quad \tilde{E} = \frac{\lambda_A(3\lambda_B - \lambda_A)}{3(3\lambda_A + \lambda_B)}, \quad \tilde{\sigma} = \frac{2\lambda_A - \lambda_B}{3\lambda_A + \lambda_B}. \quad (30)$$

Обратим внимание, что модуль сжатия аппроксимирующей сплошной среды определяется только одним инвариантом кристалла  $\lambda_A \equiv \lambda_{\text{наа}}$ .

### ДВУХПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ДЕБАЯ

Модель Дебая [5] описывает термодинамические свойства изотропной упругой среды. Упругие свойства такой среды характеризуются, двумя модулями упругости, в качестве которых можно выбрать, например, коэффициенты Ламэ  $\lambda$  и  $\mu$  или какие-либо два других модуля (30). В соответствии с этим имеется две звуковые моды, отвечающие продольным и поперечным колебаниям и две скорости  $c_l$  и  $c_t$  распространения таких волн (14). В стандартной теории Дебая [5] используется еще одно упрощение: вместо двух скоростей, вводится средняя скорость звуковых колебаний  $c_D$ , определяемая соотношением:

$$\frac{1}{c_D^3} = \frac{2}{c_l^3} + \frac{1}{c_t^3} = \rho^{3/2} \left[ \frac{2}{\mu^{3/2}} + \frac{1}{(\lambda + 2\mu)^{3/2}} \right]. \quad (31)$$

Следствием этого приближения является то, что изотропная упругая среда характеризуется единственным параметром  $\Theta_D = \hbar c_D k_D$  - энергией Дебая, а теплоемкость оказывается функцией только отношения  $T/\Theta_D$ . Определение (31) означает, что фактически усредняются обратные кубы скоростей. Однако, определить среднюю скорость можно и иначе, например, соотношением

$$c_0^2 = \frac{1}{3}(2c_t^2 + c_l^2) = \frac{(\lambda + 4\mu)}{3\rho}, \quad (32)$$

которое возникает в подходе, основанном на описании взаимодействующих фононов в модели самосогласованного поля [6,7]. Определение (32) представляется более естественным, поскольку при  $\mu \rightarrow 0$  и  $c_t \rightarrow 0$  из (31) следует, что и  $c_D \rightarrow 0$ , тогда как определение (32) дает в этом случае конечное значение средней скорости  $c_0$ . Отношение средних скоростей, определенных формулами (31) и (32) зависит от отношения коэффициентов Ламэ

$$\frac{c_0^2}{c_D^2} = \frac{1}{3^{5/3}}(4 + \lambda/\mu) \left[ 2 + \frac{1}{(2 + \lambda/\mu)^{3/2}} \right]^{2/3}, \quad (33)$$

где  $\lambda/\mu > -2/3$  [1]. Зависимость отношения скоростей  $c_D/c_0$  от отношения  $\lambda/\mu$  показана на рис. 1. С увеличением отношения  $\lambda/\mu$  различие в средних скоростях, определенных формулами (31) и (32) возрастает. Может возникнуть вопрос, какое усреднение считать правильным. Если считать среднюю скорость и энергию Дебая феноменологическими параметрами, то этот вопрос, по-видимому, не является принципиальным. В тоже время, очевидно, что переход от использования двух параметров, которыми характеризуется упругая среда, к

одному параметру не является необходимым и более естественно строить теорию с учетом обеих скоростей фононов. При этом усложнение теории оказывается незначительным, а вопрос о способе введения усредненной скорости вообще не возникает. Можно предположить, что теория с двумя энергиями Дебая будет иногда описывать более тонкие эффекты. Кроме того, появляется возможность применения такой модели для расчетов кристаллов различной симметрии с помощью модулей упругости, если пользоваться методом аппроксимирующей изотропной среды, который был рассмотрен выше.

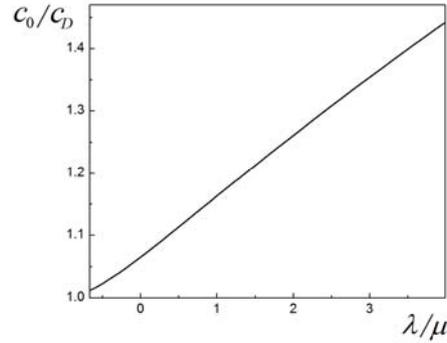


Рис. 1. Зависимость отношения средних скоростей фононов  $c_0/c_D$ , определенных формулами (31) и (32), от отношения коэффициентов Ламэ  $\lambda/\mu$

В этом разделе сформулируем модель Дебая, не пользуясь усреднением скорости фононов. Такую модель естественно назвать двухпараметрической. Обычную модель Дебая будем также называть однопараметрической. При оптимальном выборе скоростей фононов (28) свободная энергия принимает вид

$$F = \frac{3N}{8}(\Theta_l + 2\Theta_t) + \frac{NT}{3} \left[ 3 \ln(1 - e^{-\beta\Theta_t}) - D(\beta\Theta_t) \right] + \frac{2NT}{3} \left[ 3 \ln(1 - e^{-\beta\Theta_l}) - D(\beta\Theta_l) \right]. \quad (34)$$

Энтропия  $S = -\partial F/\partial T$  и энергия  $E = F + TS$  даются формулами:

$$S = -\frac{N}{3} \left[ 3 \ln(1 - e^{-\beta\Theta_t}) - 4D(\beta\Theta_t) \right] - \frac{2N}{3} \left[ 3 \ln(1 - e^{-\beta\Theta_l}) - 4D(\beta\Theta_l) \right], \quad (35)$$

$$E = \frac{3N}{8}(\Theta_l + 2\Theta_t) + NTD(\beta\Theta_t) + 2NTD(\beta\Theta_l). \quad (36)$$

Теплоемкость  $C_V = T(\partial S/\partial T)$ , с учетом (35), определяется формулой

$$C_V = N \left[ 4D(\beta\Theta_t) - \frac{3\beta\Theta_t}{e^{\beta\Theta_t} - 1} \right] + 2N \left[ 4D(\beta\Theta_l) - \frac{3\beta\Theta_l}{e^{\beta\Theta_l} - 1} \right]. \quad (37)$$

Здесь энергии Дебая определены так же, как и выше  $\Theta_t = \hbar c_t k_D$ ,  $\Theta_l = \hbar c_l k_D$ , но теперь скорости выражаются через инварианты тензора модулей упругости кристалла оптимальными соотношениями (28). Если в формулах (34)-(37) формально положить энергии Дебая равными, то получим соответствующие формулы стандартной теории Дебая. Однако, поскольку в изотропной среде справедливо неравенство  $c_l/c_t > \sqrt{4/3}$ , то такое же неравенство  $\Theta_l/\Theta_t > \sqrt{4/3}$  справедливо и для энергий Дебая, а потому эти энергии не могут быть равными.

Поскольку более привычно вместо двух энергий Дебая пользоваться одной энергией, введем вместо двух параметров размерности энергии  $\Theta_t$ ,  $\Theta_l$  единую среднюю энергию Дебая  $\Theta$  и один безразмерный параметр, в качестве которого удобно выбрать угол  $\chi$ :

$$\Theta^2 = \frac{1}{3}(2\Theta_t^2 + \Theta_l^2), \quad \sin \chi = \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{\Theta_t}{\Theta}, \quad \cos \chi = \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{\Theta_l}{\Theta}, \quad \operatorname{tg} \chi = \sqrt{2} \frac{\Theta_t}{\Theta_l}. \quad (38)$$

Определенная таким образом средняя энергия Дебая  $\Theta$  соответствует усреднению скоростей (32). Вследствие приведенного выше неравенства  $\Theta_l/\Theta_t > \sqrt{4/3}$  для отношения энергий Дебая, тангенс введенного в (38) угла  $\chi$  принимает максимальное значение при угле  $\chi_m$ , который определяется условием  $\operatorname{tg} \chi_m = \sqrt{3/2}$ , откуда  $\chi_m = 0,886$  и, соответственно,  $\cos \chi_m = \sqrt{2/5}$ ,  $\sin \chi_m = \sqrt{3/5}$ . Таким образом, угол может изменяться в пределах  $0 \leq \chi < \chi_m$ . Приведем также выражения для определенных в (38) параметров через инварианты тензора упругости кристалла:

$$\Theta^2 = \frac{\hbar^2 k_D^2}{9\rho} \lambda_B, \quad \sin^2 \chi = \frac{(3\lambda_B - \lambda_A)}{5\lambda_B}, \quad \cos^2 \chi = \frac{(2\lambda_B + \lambda_A)}{5\lambda_B}. \quad (39)$$

Рассмотрим более детально поведение теплоемкости (37) с температурой. Как известно, в стандартной теории Дебая теплоемкость есть универсальная функция отношения  $T/\Theta_D$  [5]. По этой модели теплоемкости всех тел, находящихся в соответственных состояниях, т.е. обладающих одинаковыми  $T/\Theta_D$ , должны быть одинаковыми. Для реальных тел этот закон, разумеется, не выполняется. В предлагаемой двухпараметрической модели, как видим, закон соответственных состояний не имеет места, поскольку теплоемкость зависит также от параметра  $\chi$ , который различен для разных тел (39). При высоких температурах  $T \gg \Theta$  формула для теплоемкости внешне имеет тот же вид, что в обычной теории

$$C_V = 3N \left[ 1 - \frac{1}{20} \left( \frac{\Theta}{T} \right)^2 \right]. \quad (40)$$

Здесь средняя энергия Дебая определена соотношениями (38), (39), а зависимость от параметра  $\chi$  в этом приближении выпадает. При низких температурах  $T \ll \Theta$ , как и в обычной теории, сохраняется кубическая зависимость от температуры

$$C_V = \frac{12}{5} \pi^4 N \cdot f(\chi) \left( \frac{T}{\Theta} \right)^3, \quad (41)$$

однако в данном случае коэффициент зависит также от параметра  $\chi$  через функцию

$$f(\chi) \equiv \frac{1}{3^{5/2}} \left( \frac{1}{\cos^3 \chi} + \frac{2^{5/2}}{\sin^3 \chi} \right) \quad (42)$$

и оказывается различным для разных веществ. Влияние второго параметра  $\chi$  наиболее существенно проявляется при низких температурах. При высоких температурах главное отличие двухпараметрической теории состоит в том, что здесь иначе определена средняя энергия Дебая (38), (39) и, при этом, она связана с инвариантами тензора упругости кристалла определенной симметрии (39).

Приведем также выражение для плотности фононных уровней, которая в данном случае определяется формулой

$$g(\omega) = \int \frac{dk}{(2\pi)^3} [\delta(\omega - c_l k) + 2\delta(\omega - c_t k)]. \quad (43)$$

В результате имеем

$$g(\omega) \cdot 2\pi^2 = \begin{cases} \omega^2 (1/c_l^3 + 2/c_t^3), & \omega < k_D c_l, \\ \omega^2/c_l^3, & k_D c_l < \omega < k_D c_t, \\ 0, & \omega > k_D c_t. \end{cases} \quad (44)$$

Вид плотности фононных состояний показан на рис. 2. Из-за наличия двух фононных ветвей у функции  $g(\omega)$  возникает скачок при частоте  $\omega = k_D c_l$ , и, поэтому, структура плотности состояний оказывается сложнее, чем в стандартной модели. Как известно [8,9], и в плотности фононных состояний реальных кристаллов имеются особенности Ван Хофа, так что двухпараметрическая модель в этом отношении ближе к реальным кристаллам.

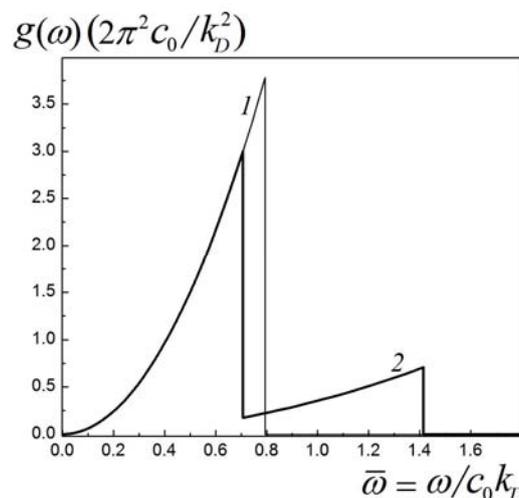


Рис. 2. Плотности фононных состояний  $g(\omega) \left( 2\pi^2 c_0 / k_D^2 \right)$ , как функции частоты  $\bar{\omega} = \omega / c_0 k_D$ ; 1 – однопараметрическая модель, 2 – двухпараметрическая модель. Рассчитано при  $\lambda/\mu = 2$ .

**КРИСТАЛЛЫ КУБИЧЕСКОЙ СИНГОНИИ**

В качестве примера рассмотрим применение двухпараметрической теории Дебая к кристаллам кубической сингонии, которые наиболее близки к изотропной среде и характеризуются тремя модулями упругости. В этом случае два инварианта через три модуля упругости кубического кристалла в стандартных обозначениях [2] даются выражениями  $\lambda_A = 3c_{11} + 6c_{12}$ ,  $\lambda_B = 3c_{11} + 6c_{44}$ , а аппроксимирующие коэффициенты Ламэ:

$$\tilde{\lambda} = \frac{1}{5}(c_{11} + 4c_{12} - 2c_{44}), \quad \tilde{\mu} = \frac{1}{5}(c_{11} - c_{12} + 3c_{44}). \tag{45}$$

Значения этих величин для некоторых кубических кристаллов при низких температурах приведены в таблице 1.

Таблица 1.

Значения адиабатических модулей упругости вольфрама, меди и свинца при низких температурах [8], инвариантов  $\lambda_A, \lambda_B$  и аппроксимирующих коэффициентов Ламэ (45) (в единицах  $10^{12} \text{ dyn/cm}$ ).

Кристалл	$c_{11}$	$c_{12}$	$c_{44}$	$\lambda_A$	$\lambda_B$	$\tilde{\lambda}$	$\tilde{\mu}$
W	5,326	2,049	1,631	28,272	25,764	2,052	1,634
Cu	1,762	1,249	0,818	12,78	10,194	1,024	0,593
Pb	0,555	0,454	0,194	4,389	2,829	0,397	0,137

В таблице 2 приведены плотность, поперечная и продольная скорости фононов, вычисленные с использованием данных таблицы 1 и средние скорости, определённые формулами (31) и (32).

Таблица 2.

Значения плотности  $\rho$  ( $g/cm^3$ ), поперечной  $c_t$  и продольной  $c_l$  скоростей (28), а также усредненных скоростей  $c_D$  (31) и  $c_0$  (32) (в единицах  $10^6 \text{ cm/s}$ ).

Кристалл	$\rho$	$c_t$	$c_l$	$c_D$	$c_0$
W	1,551	0,292	0,524	0,225	0,385
Cu	9,018	0,257	0,495	0,199	0,355
Pb	11,60	0,109	0,240	0,085	0,165

В таблице 3 даны волновое число Дебая  $k_D$ , параметр  $\chi$  (38), значение функции  $f(\chi)$  (42) и температуры Дебая, вычисленные по формулам  $\Theta_t = \hbar c_t k_D$ ,  $\Theta_l = \hbar c_l k_D$ ,  $\Theta_D = \hbar c_D k_D$ ,  $\Theta \equiv \Theta_0 = \hbar c_0 k_D$ , где величины скоростей взяты из таблицы 2, а также экспериментальное низкотемпературное значение температуры Дебая  $\Theta_{D\text{exp}}$  [8].

Таблица 3.

Волновое число  $k_D$  (в  $10^8 \text{ cm}^{-1}$ ), температуры Дебая в градусах Кельвина (К).

Кристалл	$k_D$	$\Theta_t$	$\Theta_l$	$\Theta = \Theta_0$	$\Theta_D$	$\Theta_{D\text{exp}}$	$\chi$	$f(\chi)$
W	1,551	346	621	456	266	400	0,665	1,676
Cu	1,717	337	650	466	261	343	0,632	1,882
Pb	1,263	105	232	159	82	105	0,569	2,427

Как видим, вычисленные в стандартной однопараметрической модели по величинам упругих постоянных температуры Дебая  $\Theta_D$ , оказываются существенно меньше измеренных температур Дебая  $\Theta_{D\text{exp}}$ . Расчет по величинам упругих постоянных температуры Дебая  $\Theta$  в предложенной двухпараметрической модели даёт значения, большие чем  $\Theta_{D\text{exp}}$ . Введение в теорию второго параметра наиболее заметно влияет на расчёт термодинамических величин при низких температурах. На рис.3 показаны расчетные температурные зависимости теплоёмкости меди при низких температурах. Расчёты выполнены с использованием аппроксимированных значений модулей упругости для однопараметрической (кривая 1) и двухпараметрической (кривая 2) моделей. Кривая 3 построена по экспериментальному значению температуры

Дебая. Относительная ошибка  $\delta = (C_V - C_{V_{\text{exp}}}) / C_{V_{\text{exp}}}$  в однопараметрической модели для меди  $\delta_1 = 1,27$ . В двухпараметрической модели расхождение с экспериментальным значением оказывается значительно меньшим:  $\delta_2 = 0,25$ . Величины этих же отклонений для вольфрама  $\delta_1 = 2,7$  и  $\delta_2 = 0,57$ , а для свинца  $\delta_1 = 1,1$  и  $\delta_2 = 0,3$ . Как видим расчет в однопараметрической модели даёт большое расхождение с экспериментальными данными. В тоже время двухпараметрическая модель приводит к значительно лучшему согласию с экспериментом и может быть использована для теоретических оценок температуры Дебая по величинам модулей упругости кристалла.

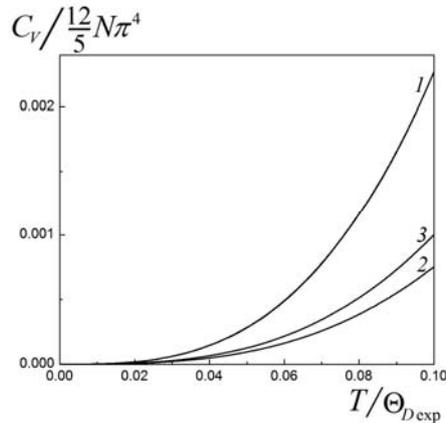


Рис. 3. Температурная зависимость теплоемкости меди при низких температурах:

1 – расчет через аппроксимированные модули упругости по однопараметрической модели, 2 – аналогичный расчет по двухпараметрической модели, 3 – зависимость в стандартной модели, где температура Дебая рассматривается как феноменологический параметр. Температура Дебая для Cu  $\Theta_{D_{\text{exp}}} = 343 \text{ K}$ .

### ВЫВОДЫ

Показано, что предложенный ранее [2] метод описания упругих свойств кристаллов на основе сравнения с изотропной средой вытекает из требования максимальной близости свободных энергий кристалла и изотропной среды. В работе предложена модель изотропной упругой среды, аналогичная стандартной модели Дебая, где учитывается существование как поперечных, так и продольных фононов. В этой модели, помимо энергии Дебая вводится дополнительный параметр, так что закон соответственных состояний, характерный для обычной теории Дебая перестает выполняться. Расчет теплоемкости при низких температурах с использованием аппроксимированных модулей упругости приводит к значительно лучшему согласию с экспериментальными данными, чем для обычной теории, использующей среднюю скорость фононов.

Существует две крайние точки зрения на модель Дебая. Зачастую модели Дебая придают излишне общий смысл и при обработке экспериментальных данных подгоняют наблюдаемые величины к соотношениям этой теории, полагая, что энергия Дебая зависит от температуры. Противоположная точка зрения состоит в том, что соотношения теории Дебая рассматриваются как грубые интерполяционные формулы [1,9]. Модель Дебая, разумеется, является весьма приближенной и простой (в чем и состоит её ценность) моделью твердого тела, но, по нашему мнению, ее значение не сводится только к возможности построения единой интерполяционной формулы, которая правильно бы описывала поведение тела в пределе низких и высоких температур. Эта модель, как показано, допускает дальнейшее развитие и, в частности, обобщение с учетом взаимодействия фононов [6,7], а также может быть распространена для описания поверхностных явлений в твердом теле.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Landau L.D., Lifshic E.M. Teoriya uprugosti [Theory of elasticity]. – M.: Nauka, 1987. – 246 p. (in Russian)
2. Fedorov F.I. Teoriya uprugikh voln v kristallakh [The theory of elastic waves in crystals]. – M.: Nauka, 1965. – 388 p. (in Russian)
3. Akhiezer A.I., Aleksin V.F., Khodusov V.D. Gazodinamika kvazichastitc. I. Obshchaya teoriya [Gas dynamics of quasiparticles. General theory] // FNT. – 1994. – Vol. 20. – No.12. – P. 1199-1238. (in Russian)
4. Aleksin V.F., Belyaev N.R., Khodusov V.D. Model' privedennogo izotropnogo kristalla otnositel'no modulei uprugosti [The model of a reduced isotropic crystal with respect to the elastic moduli] // The Journal of Kharkiv National University, physical series "Nuclei, Particles, Fields". – 1999. - No.438. - Iss.1(5). - P.39-42. (in Russian)
5. Landau L.D., Lifshic E.M. Statisticheskaya fizika. Chast' I [Statistical physics. Part I]. – M.: Nauka, 1976. – 584 s. (in Russian)
6. Poluektov Yu.M. Samosoglasovannoe opisanie sistemy vzaimodeistvuyushchikh fononov [Self-consistent description of a system of interacting phonons] // FNT. – 2015. – T. 41, No.11. – S. 1081-1090. [Low Temperature Physics. – 2015. – Vol. 41. – No.11. – P. 922-929]. (in Russian)
7. Poluektov Yu.M. Samosoglasovannoe opisanie vzaimodeistvuyushchikh fononov v kristallicheskoj reshetke [Self-consistent description of interacting phonons in the crystal lattice] // East European Journal of Physics. – 2016. – Vol.3. – No.3. – P. 35-46. (in Russian)
8. Kittel' Ch. Vvedenie v fiziku tverdogo tela [Introduction to Solid State Physics]. – M.: Nauka, 1978. – 792 p. (in Russian)
9. Ashcroft N., Mermin N. Fizika tverdogo tela. Tom 2 [Solid State Physics. Volume 2]. – M.: Mir, 1979. – 422 p. (in Russian)

PACS: 02.81

## LONGITUDINAL-FLEXURAL SELF-SUSTAINED VIBRATIONS OF NANOTUBE CONVEYING FLUID

**K. Avramov**

*National Academy of Science of Ukraine, Podgorny Institute for Mechanical Engineering, Department of Vibrations  
2/10 Pozharskogo St., 61046, Kharkiv, Ukraine*

*E-mail: [kvavr@kharkov.ua](mailto:kvavr@kharkov.ua), <https://orcid.org/0000-0002-8740-693X>*

*Received June 21 2018; accepted 14 September 2018*

Beam model of geometrical nonlinear longitudinal-flexural self-sustained vibrations of nanotube conveying fluid is obtained with account of nonlocal elasticity. The Euler-Bernoulli hypotheses are the basis of this model. The geometrical nonlinear deformations are described by nonlinear relations between strains and displacements. It is assumed, that the amplitudes of the longitudinal and bending vibrations are commensurable. Using variational methods of mechanics, the system of two nonlinear partial differential equations is derived to describe the nanotube self-sustained vibrations. The Galerkin method is applied to obtain the system of nonlinear ordinary differential equations. The harmonic balanced method is used to analyze the monoharmonic vibrations. Then the analysis of the self-sustained vibrations is reduced to the system of the nonlinear algebraic equations with respect to the vibrations amplitudes. The Newton method is used to solve this system of nonlinear algebraic equations. As a result of the simulations, it is determined that the stable self-sustained vibrations originate in the Hopf bifurcation due to stability loss of the trivial equilibrium. These stable vibrations are analyzed, when the fluid velocity is changed. The results of the self-sustained vibrations analysis are shown on the bifurcation diagram. The infinite sequence of the period-doubling bifurcations of the monoharmonic vibrations is observed. The chaotic motions take place after these bifurcations. As a result of the numerical simulations it is determined, that the amplitudes of the longitudinal and flexural vibrations are commensurable.

**KEY WORDS:** longitudinal-flexural self-sustained vibration, sequence of period-doubling bifurcations, chaotic self-sustained vibration, Hopf bifurcation

### ПОЗДОВЖНІ – ЗГІНАЛЬНІ АВТОКОЛИВАННЯ НАНОТРУБОК ТРАНСПОРТУЮЧИХ РІДИНУ

**К. Аврамов**

*Національна академія наук України, Інститут проблем машинобудування ім. А.М. Підгорного  
вул. Д. Пожарського 2/10, Харків 61046, Україна*

Ураховуючи нелокальну пружність, у статі отримано модель поздовжньо – згинальних автоколиваний нанотрубок транспортуючих рідину при геометрично нелінійному деформуванні. Гіпотези Ейлера – Бернуллі є засадами цієї моделі. Геометрично нелінійне деформування описується нелінійним зв'язком між деформаціями та переміщеннями нанотрубки. При виведенні моделі припускалося, що амплітуди поздовжніх та згинальних коливань сумірні. Використовуючи варіаційні методи механіки, отримано систему двох нелінійних рівнянь у часткових похідних відносно поздовжніх та поперечних переміщень, які описують автоколивання нанотрубок. За допомогою методу Галеркіна отримано систему нелінійних звичайних диференціальних рівнянь, які описують автоколивання. Моногармонічні автоколивання досліджуються методом гармонічного балансу. Аналіз автоколиваний зводиться до системи нелінійних алгебраїчних рівнянь відносно амплітуд автоколиваний. Така система нелінійних рівнянь вирішується за допомогою методу Ньютона. У результаті чисельного моделювання встановлено, що при втраті стійкості тривіального положення рівноваги внаслідок біфуркацій Хопфа виникають стійкі автоколивання, які досліджуються при зміні швидкості руху рідини по нанотрубці. Результати цього аналізу наводяться на біфуркаційній діаграмі. У системі спостерігається нескінченна послідовність біфуркацій подвоєння періоду моно гармонічних автоколиваний. Після цієї послідовності біфуркацій спостерігаються хаотичні рухи. У результаті чисельного моделювання встановлено, що амплітуди поздовжніх та згинальних коливань сумірні.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** поздовжньо-згинні автоколивання, послідовність біфуркацій подвоєння періоду, хаотичні автоколивання, біфуркація Хопфа

### ПРОДОЛЬНО-ИЗГИБНЫЕ АВТОКОЛЕБАНИЯ НАНОТРУБКИ ТРАНСПОРТИРУЮЩЕЙ ЖИДКОСТЬ

**К. Аврамов**

*Национальная академия наук Украины, Институт проблем машиностроения им. А.Н. Подгорного  
ул. Пожарского 2/10, Харьков 61046, Украина*

Учитывая нелокальную упругость, в статье представлена модель продольно-изгибных автоколебаний нанотрубки транспортирующей жидкостью при ее геометрически нелинейном деформировании. Гипотезы Эйлера-Бернулли являются основой этой модели. Геометрически нелинейное деформирование описывается нелинейной связью между деформациями и перемещениями нанотрубки. При выводе модели предполагалось, что амплитуды продольных и изгибных колебаний соизмеримы. Используя вариационные методы механики, получена система двух нелинейных уравнений в частных производных относительно продольных и поперечных перемещений, описывающая автоколебания нанотрубки. С помощью метода Галеркина выведена система нелинейных обыкновенных дифференциальных уравнений, описывающая автоколебания. Моногармонические автоколебания нанотрубки исследуются методом гармонического баланса. Тогда анализ автоколебаний сводится к системе нелинейных алгебраических уравнений относительно амплитуд автоколебаний. Такая система нелинейных алгебраических уравнений решается методом Ньютона. В результате численного моделирования установлено, что при потере устойчивости тривиального состояния равновесия вследствие бифуркации Хопфа образуются устойчивые автоколебания, которые исследуются при изменении скорости движения жидкости по нанотрубке. Результаты

такого анализа представляются на бифуркационной диаграмме. В системе наблюдается бесконечная последовательность бифуркаций удвоения периода моногармонических автоколебаний. После этой последовательности бифуркаций наблюдаются хаотические автоколебания. В результате численного моделирования установлено, что амплитуды продольных и изгибных колебаний соизмеримы.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** продольно-изгибные автоколебания, последовательность бифуркаций удвоения периода, хаотические автоколебания, бифуркация Хопфа

Carbon nanotubes are macromolecules of carbon with a cylindrical shell shape. These tubes are used for a variety of technological and biomedical applications including nano-pipes conveying fluids. The moving fluid causes the structural instability and the self-sustained vibrations of nanotubes. The linear model of the nanotube conveying fluid, which are based on the Euler-Bernoulli beam theory, are treated in the papers [1-6]. The effect of the fluid velocity on the nanotube eigenfrequencies is analyzed. Wang, Lee, Chang [7, 8] derive the model of the vibrations of the nanotube conveying fluid accounting nonlocal elasticity and the Euler-Bernoulli beam theory. The critical velocities of the fluid are analyzed. Lee, Chang and others [9, 10] suggest the model of the nanotube vibrations in the elastic medium. The vibrations of nanotube conveying fluid are analyzed by Chang, Lee [11] using the Timoshenko beam model.

The shell models, which are based on the Donnell theory and the nonlocal elasticity, are used to model the double walled carbon nanotubes vibrations in the papers [12, 13]. The dynamic instability is analyzed. The model of vibrations of triple-walled carbon nanotubes (CNT) conveying fluid is obtained on the basis of the Euler-Bernoulli beam model in the paper [14]. The model of the vibrations of the multi walled carbon nanotubes conveying fluid is derived in the paper [15]. The Timoshenko beam model is used to describe the multi-walled carbon nanotubes conveying fluid by Khosravian, Rafii-Tabar [16]. The dependence of the eigenfrequencies on the fluid velocity is analyzed.

The model of the flexural – longitudinal self-sustained vibrations of the nanotube is derived in the present paper. This model takes the form of the system of nonlinear ordinary differential equations, which describe the geometrical nonlinear vibrations of the nanotube. The system of the differential equations is derived from the system of two partial differential equations, which describe the flexural- longitudinal self-sustained vibrations of the nanotube conveying fluid. The derivation of the model of the flexural-longitudinal self-sustained vibrations is the novelty of the present paper.

The aim of the paper is analysis of the bifurcation behavior of the self-sustained vibrations of the nanotube conveying fluid. The significant longitudinal vibration, which accompanies the flexural vibrations, is detected. This is the novelty of this paper. Moreover, it is obtained, that the periodic monoharmonic self-sustained vibrations undergo the infinite sequence of the period- doubling bifurcations. Then these motions are transformed into the chaotic ones.

### MAIN EQUATIONS

The cantilever nanotube conveying fluid is considered (Fig.1). Following the papers [1, 3, 8], analysis of the nanotube conveying fluid dynamics is reduced to modeling of very small dimension mechanical pipe vibration. The length of the nanotube is  $L$ . The mass per unit length and the flexural stiffness are denoted by  $m$  and  $EI$ , respectively. The fluid is moved with constant velocity  $U_*$ . The nanotube is directed lengthwise  $x$  axis. The nanotube vibrations take place in the plane  $(x, y)$ . The projections of the displacements on the  $x$  and  $y$  axes are denoted by  $u(s, t)$  and  $v(s, t)$ , where  $s$  is arc length of the nanotube neutral line.

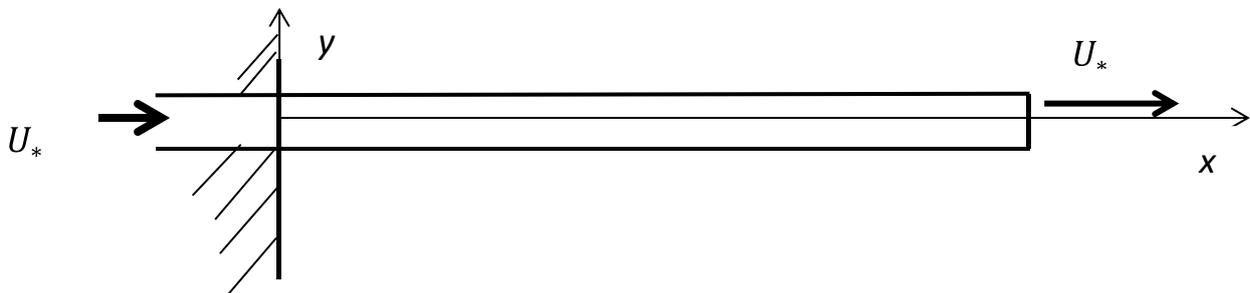


Fig.1. Outline of nanotube conveying fluid.

The nanotube diameter is significantly less, then its length. Therefore, the Euler-Bernoulli theory is used in the subsequent analysis. Thus, the shear and rotatory inertia are not accounted. The nonlocal elasticity is accounted in the nanotube model [17, 18]. It is assumed, that the strains are small and the displacements are moderate. Then the nanotube performs the geometrically nonlinear vibrations.

The cantilever nanobeam satisfies the following boundary conditions:

$$v|_{s=0} = \frac{\partial v}{\partial s}|_{s=0} = u|_{s=0} = 0; \quad M|_{s=L} = Q|_{s=L} = \frac{\partial u}{\partial s}|_{s=L} = 0, \quad (1)$$

where  $M$  is resultant bending moment;  $Q$  is resultant shear force.

The Hamilton's principle is applied to derive the equations of the nanotube motions. It takes the following form for the cantilever nanotube [19, 20]:

$$\delta \int_{t_1}^{t_2} \mathcal{L} dt = \int_{t_1}^{t_2} \left[ M_1 U_* \left( \frac{\partial \vec{r}_L}{\partial t} + U_* \vec{t}_L^0 \right) \cdot \delta \vec{r}_L \right] dt, \tag{2}$$

where  $\mathcal{L}$  is Lagrange function, which has the form:  $\mathcal{L} = T_F + T_1 - \Pi_1$ ,  $T_F$  is kinetic energy of the moving fluid;  $T_1, \Pi_1$  are kinetic and potential energies of the nanotube;  $t_1, t_2$  are initial and final instances of time;  $M_1$  is mass per unit length of the moving fluid;  $\vec{r}_L$  is radius-vector of the end of the nanotube neutral line;  $\vec{t}_L^0$  is unit tangent vector to the neutral line at  $x = L$ .

The deformed neutral line of the nanotube is considered. Then its position is described by the radius-vector [14]:  $\vec{r} = (s + u)\vec{i}^0 + v\vec{j}^0$ , where  $\vec{i}^0, \vec{j}^0$  are unit vectors of the axes  $x, y$ . The unit tangential vector to the neutral line  $\vec{\tau}^0$  takes the form:  $\vec{\tau}^0 = \frac{\partial \vec{r}}{\partial s} = \left( 1 + \frac{\partial u}{\partial s} \right) \vec{i}^0 + \frac{\partial v}{\partial s} \vec{j}^0$ .

The variation of the potential energy of the nanotube is the following:

$$\delta \Pi_1 = \int_0^L [N \delta \varepsilon + M \delta k] ds, \tag{3}$$

where  $N$  is resultant longitudinal force;  $\varepsilon$  is longitudinal strain of the neutral line;  $k$  is curvature of the neutral line. The longitudinal strain takes the form:  $\varepsilon = \frac{\partial u}{\partial x} + 0.5 \left( \frac{\partial v}{\partial x} \right)^2 = \frac{\partial u}{\partial s} + \left( \frac{\partial u}{\partial s} \right)^2 + 0.5 \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2$ . The curvature of the neutral line is determined as:

$$k = \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} + 0.5 \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \frac{\partial^2 v}{\partial s^2}. \tag{4}$$

The variation of the potential energy has the form:

$$\delta \Pi_1 = \int_0^L \delta v \left\{ \frac{\partial^2 M}{\partial s^2} + \frac{\partial^2}{\partial s^2} \left[ \frac{M}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right] - \frac{\partial}{\partial s} \left[ N \frac{\partial v}{\partial s} \right] - \frac{\partial}{\partial s} \left[ M \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \frac{\partial v}{\partial s} \right] \right\} ds + \int_0^L \delta u \left[ -\frac{\partial N}{\partial s} - \frac{\partial}{\partial s} \left( 2N \frac{\partial u}{\partial s} \right) \right] ds. \tag{5}$$

The velocity of the nanotube motions is the following:  $\vec{V}_P = \frac{\partial u}{\partial t} \vec{i}^0 + \frac{\partial v}{\partial t} \vec{j}^0$ . The variation of the kinetic energy takes the form:

$$\delta \int_{t_1}^{t_2} T_1 dt = -m \int_{t_1}^{t_2} \int_0^L \left[ \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} \delta u + \frac{\partial^2 v}{\partial t^2} \delta v \right] ds dt. \tag{6}$$

The kinetic energy of the moving fluid  $T_F$  is considered. The velocity of the moving fluid  $\vec{V}_F(s, t)$  has the form:  $\vec{V}_F(s, t) = \vec{V}_P(s, t) + U_* \vec{\tau}^0(s, t)$ . The kinetic energy of the moving fluid is the following:

$$T_F = \frac{M_1}{2} \int_0^L \left\{ \left( U_* + \frac{\partial u}{\partial t} + U_* \frac{\partial u}{\partial s} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial t} + U_* \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right\} ds, \tag{7}$$

The variation of the kinetic energy has the form:

$$\int_{t_1}^{t_2} \delta T_F dt = \int_{t_1}^{t_2} \left[ M_1 U_* \left( \frac{\partial \vec{r}_L}{\partial t} + U_* \vec{t}_L^0 \right) \cdot \delta \vec{r}_L \right] dt - M_1 \int_{t_1}^{t_2} dt \int_0^L ds \left\{ \delta u \left[ \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + 2U_* \frac{\partial^2 u}{\partial t \partial s} + U_*^2 \frac{\partial^2 u}{\partial s^2} \right] + \delta v \left[ \frac{\partial^2 v}{\partial t^2} + 2U_* \frac{\partial^2 v}{\partial t \partial s} + U_*^2 \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \right] \right\}. \tag{8}$$

Following the variation methods [21], the equations (8, 7, 6, 5) are substituted into (2). Then the following system of the partial differential equations is obtained:

$$\frac{\partial^2 M}{\partial s^2} + (M_1 + m) \frac{\partial^2 v}{\partial t^2} + 2M_1 U_* \frac{\partial^2 v}{\partial t \partial s} + M_1 U_*^2 \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} - \frac{\partial}{\partial s} \left[ N \frac{\partial v}{\partial s} \right] - \frac{\partial}{\partial s} \left[ M \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \frac{\partial v}{\partial s} \right] + \frac{\partial^2}{\partial s^2} \left[ \frac{M}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right] = 0; \tag{9}$$

$$\frac{\partial N}{\partial s} - (M_1 + m) \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - 2M_1 U_* \frac{\partial^2 u}{\partial t \partial s} - M_1 U_*^2 \frac{\partial^2 u}{\partial s^2} + \frac{\partial}{\partial s} \left[ 2N \frac{\partial u}{\partial s} \right] = 0. \tag{10}$$

The nonlocal elasticity of the nanotube is accounted by the equation [17]:  $\sigma_{XX} - (e_0 a)^2 \frac{\partial^2 \sigma_{XX}}{\partial s^2} = E \varepsilon_{XX}$ , where  $\sigma_{XX}, \varepsilon_{XX}$  are stresses and strains;  $E$  is Young's modulus;  $a$  is internal characteristic length;  $e_0$  is a constant. The resultant longitudinal force and the resultant bending moment are determined as  $N = \int_A \sigma_{XX} dA$ ;  $M = \int_A y \sigma_{XX} dA$ , where  $A$  is nanotube cross section. Strains of the arbitrary point of the nanotube are calculated from the following equation:  $\varepsilon_{XX} = \varepsilon + yk$ . Then the resultant longitudinal force and resultant bending moment satisfy the following equation:

$$N - (e_0 a)^2 \frac{\partial^2 N}{\partial s^2} = EA\varepsilon; \quad M - (e_0 a)^2 \frac{\partial^2 M}{\partial s^2} = Elk, \quad (11)$$

where  $I$  is cross section inertia moment.

The equations (11) are substituted into the equations (9, 10). Then the following equations of the nanotube motions are obtained:

$$EI \frac{\partial^4 v}{\partial s^4} + (M_1 + m) \frac{\partial^2 v}{\partial t^2} + 2M_1 U_* \frac{\partial^2 v}{\partial t \partial s} + M_1 U_*^2 \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} - (e_0 a)^2 \left[ (M_1 + m) \frac{\partial^4 v}{\partial t^2 \partial s^2} + 2M_1 U_* \frac{\partial^4 v}{\partial t \partial s^3} + M_1 U_*^2 \frac{\partial^4 v}{\partial s^4} \right] + F_V = 0;$$

$$EA \frac{\partial^2 u}{\partial s^2} - (M_1 + m) \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - 2M_1 U_* \frac{\partial^2 u}{\partial t \partial s} - M_1 U_*^2 \frac{\partial^2 u}{\partial s^2} + (e_0 a)^2 \left\{ (M_1 + m) \frac{\partial^4 u}{\partial t^2 \partial s^2} + 2M_1 U_* \frac{\partial^4 u}{\partial t \partial s^3} + M_1 U_*^2 \frac{\partial^4 u}{\partial s^4} \right\} + F_U = 0, \quad (12)$$

where

$$F_V = \frac{EI}{2} \frac{\partial^2}{\partial s^2} \left[ \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right] - \left\{ \frac{\partial}{\partial s} - (e_0 a)^2 \frac{\partial^3}{\partial s^3} \right\} \left[ N \frac{\partial v}{\partial s} + M \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \frac{\partial v}{\partial s} - \frac{\partial}{\partial s} \left( \frac{M}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right) \right];$$

$$F_U = EA \frac{\partial}{\partial s} \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial s} \right)^2 + 0.5 \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right\} + 2 \left\{ \frac{\partial}{\partial s} - (e_0 a)^2 \frac{\partial^3}{\partial s^3} \right\} \left[ N \frac{\partial u}{\partial s} \right].$$

The resultant longitudinal force and the resultant bending moments (11) are substituted into the nonlinear functions  $F_V, F_U$  without accounting nonlocal elasticity. As the result, it is obtained:

$$F_V = \frac{EI}{2} \frac{\partial^2}{\partial s^2} \left[ \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right] - \left\{ \frac{\partial}{\partial s} - (e_0 a)^2 \frac{\partial^3}{\partial s^3} \right\} R_*;$$

$$F_U = EA \frac{\partial}{\partial s} \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial s} \right)^2 + 0.5 \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right\} + 2EA \left\{ \frac{\partial}{\partial s} - (e_0 a)^2 \frac{\partial^3}{\partial s^3} \right\} \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial s} \right)^2 + \left( \frac{\partial u}{\partial s} \right)^3 + 0.5 \frac{\partial u}{\partial s} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right\},$$

$$R_* = EA \frac{\partial v}{\partial s} \left[ \frac{\partial u}{\partial s} + \left( \frac{\partial u}{\partial s} \right)^2 + 0.5 \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right] + EI \frac{\partial v}{\partial s} \left( \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \right)^2 - \frac{EI}{2} \frac{\partial}{\partial s} \left[ \frac{\partial^2 v}{\partial s^2} \left( \frac{\partial v}{\partial s} \right)^2 \right].$$

The nonlinear dynamical system (12) is rewritten with respect to the following dimensionless variables and the parameters:

$$(\tilde{u}, \tilde{v}) = \frac{1}{R} (u, v); \quad \eta = \frac{s}{L}; \quad \tau = \sqrt{\frac{EI}{(m+M_1)L^4}} t; \quad \bar{U}_* = \sqrt{\frac{M_1 L^2}{EI}} U_*; \quad e_n = \frac{e_0 a}{L}; \quad \varepsilon = \frac{\rho^2}{L^2}; \quad \alpha = \frac{R}{L}; \quad \gamma = \alpha \sqrt{\frac{M_1}{m+M_1}}, \quad (13)$$

where  $\rho = \sqrt{\frac{I}{A}}$  is cross section radius of gyration;  $R$  is radius of the nanotube middle surface. The system of the partial differential equations (12) with respect to the dimensionless variables and the parameters (13) takes the form:

$$\frac{\partial^4 \tilde{v}}{\partial \eta^4} + \frac{\partial^2 \tilde{v}}{\partial \tau^2} + 2\bar{U}_* \frac{\gamma}{\alpha} \frac{\partial^2 \tilde{v}}{\partial \eta \partial \tau} + \bar{U}_*^2 \frac{\partial^2 \tilde{v}}{\partial \eta^2} - e_n^2 \left\{ \frac{\partial^4 \tilde{v}}{\partial \eta^2 \partial \tau^2} + 2\bar{U}_* \frac{\gamma}{\alpha} \frac{\partial^4 \tilde{v}}{\partial \eta^3 \partial \tau} + \bar{U}_*^2 \frac{\partial^4 \tilde{v}}{\partial \eta^4} \right\} + \tilde{F}_V = 0;$$

$$\frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial \eta^2} - \varepsilon \frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial \tau^2} - 2\varepsilon \frac{\gamma}{\alpha} \bar{U}_* \frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial \eta \partial \tau} - \varepsilon \bar{U}_*^2 \frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial \eta^2} + \varepsilon e_n^2 \left\{ \frac{\partial^4 \tilde{u}}{\partial \eta^2 \partial \tau^2} + 2\frac{\gamma}{\alpha} \bar{U}_* \frac{\partial^4 \tilde{u}}{\partial \eta^3 \partial \tau} + \bar{U}_*^2 \frac{\partial^4 \tilde{u}}{\partial \eta^4} \right\} + \tilde{F}_U = 0, \quad (14)$$

where

$$\tilde{F}_V = \frac{\alpha^2}{2} \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} \left[ \left( \frac{\partial \tilde{v}}{\partial \eta} \right)^2 \frac{\partial^2 \tilde{v}}{\partial \eta^2} \right] - \left\{ \frac{\partial}{\partial \eta} - e_n^2 \frac{\partial^3}{\partial \eta^3} \right\} \tilde{R}_*;$$

$$\tilde{F}_U = \alpha \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \left( \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} \right)^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \tilde{v}}{\partial \eta} \right)^2 \right\} + 2\alpha \left\{ \frac{\partial}{\partial \eta} - e_n^2 \frac{\partial^3}{\partial \eta^3} \right\} \left[ \left( \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} \right)^2 + \alpha \left( \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} \right)^3 + \frac{\alpha}{2} \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} \left( \frac{\partial \tilde{v}}{\partial \eta} \right)^2 \right];$$

$$\tilde{R}_* = \frac{1}{\varepsilon} \left[ \alpha \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} + \alpha^2 \left( \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} \right)^2 + \frac{\alpha^2}{2} \left( \frac{\partial \tilde{v}}{\partial \eta} \right)^2 \right] \frac{\partial \tilde{v}}{\partial \eta} - \frac{\alpha^2}{2} \frac{\partial^3 \tilde{v}}{\partial \eta^3} \left( \frac{\partial \tilde{v}}{\partial \eta} \right)^2;$$

Thus, the system of two partial differential equations is obtained. This system describes the longitudinal-flexural

self- sustained vibrations of the nanotube conveying fluid. These self-sustained vibrations occur owing to the instability of the trivial equilibrium of the nanotube. This dynamic instability is described by the system of the linear partial differential equations.

**DYNAMIC INSTRABILITY OF EQUILIBRIUM**

The trivial equilibrium ( $\tilde{u} = \tilde{v} = 0$ ) of the nanotube conveying fluid is analyzed. The flexural vibrations, which are described by the equations (14), can be the origin of the dynamic instability. Note, that the equations of the longitudinal and the flexural vibrations (14) are uncoupled in the linear approximation. The nonlinear terms are not accounted to analyze the dynamic stability. The motions of the flexural vibrations are treated. They are approximated as:

$$\tilde{v} = \sum_{j=1}^{N_1} q_j^{(v)}(\tau) V_j(\eta), \tag{15}$$

where  $V_j(\eta)$  are flexural eigenmodes of the cantilever beam. The Galerkin method is applied to the partial differential equation. Then the finite degrees of freedom linear dynamical system is derived with respect to the phase coordinates  $\mathbf{z} = (\mathbf{q}^{(v)}, \mathbf{v}^{(v)}) = (q_1^{(v)}, \dots, q_{N_1}^{(v)}, v_1^{(v)} = \dot{q}_1^{(v)}, \dots, v_{N_1}^{(v)} = \dot{q}_{N_1}^{(v)})$  as:

$$\dot{\mathbf{z}} = \mathbf{D}\mathbf{z}, \tag{16}$$

where the matrix  $\mathbf{D}$  has the following form:

$$\mathbf{D} = \begin{bmatrix} 0 & \mathbf{E} \\ -\tilde{\mathbf{K}} & -\tilde{\mathbf{C}} \end{bmatrix}; \quad \tilde{\mathbf{K}} = \Lambda^{-1}\mathbf{K}; \quad \tilde{\mathbf{C}} = \Lambda^{-1}\mathbf{C};$$

$\mathbf{E}$  is identity matrix.

The characteristic exponents  $\lambda$  are calculated to analyze stability of the trivial equilibrium. The solution of the dynamical system (16) has the form:  $\mathbf{z} = \mathbf{z}_* \exp(\lambda\tau)$ . The characteristic exponents are determined from the following eigenvalue problem:

$$\mathbf{D}\mathbf{z}_* = \lambda\mathbf{z}_*. \tag{17}$$

**FINITE DEGREES OF FREEDOM NONLINEAR DYNAMICAL SYSTEM**

In order to study the self-sustained vibrations of the system (14) the finite degrees of freedom model is derived. Then the flexural displacements are expanded in the form (15) and the longitudinal displacements take the form:

$$\tilde{u} = \sum_{j=1}^{N_2} q_j^{(u)}(\tau) U_j(\eta), \tag{18}$$

where  $U_j$  are the eigenmodes of the longitudinal vibrations.

The system of the nonlinear partial differential equations (14) is transformed to the finite degrees of freedom nonlinear dynamical system to analyze the self-sustained vibrations of the nanotube conveying fluid. Then the expansions (15, 18) are substituted into the equations (14) and the Galerkin technique is applied. The nonlinear finite degrees of freedom dynamical system is obtained in the following form:

$$\begin{aligned} & \sum_{j=1}^{N_1} \Lambda_{\mu j} \ddot{q}_j^{(v)} + \sum_{j=1}^{N_1} K_{\mu j} q_j^{(v)} + \sum_{j=1}^{N_1} C_{\mu j} \dot{q}_j^{(v)} + \sum_{j_1=1}^{N_1} \sum_{j_2=1}^{j_2 \leq j_1} \sum_{j_3=1}^{j_3 \leq j_2} \alpha_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)} q_{j_1}^{(v)} q_{j_2}^{(v)} q_{j_3}^{(v)} \\ & + \sum_{j_1=1}^{N_2} \sum_{j_2=1}^{N_1} \beta_{j_1 j_2}^{(\mu)} q_{j_1}^{(u)} q_{j_2}^{(v)} + \sum_{j_1=1}^{N_2} \sum_{j_2=1}^{j_2 \leq j_1} \sum_{j_3=1}^{N_1} \beta_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)} q_{j_1}^{(u)} q_{j_2}^{(u)} q_{j_3}^{(v)} = 0; \\ & \mu = 1, \dots, N_1; \end{aligned} \tag{19}$$

$$\begin{aligned} & \tilde{\Lambda}_{\mu} \ddot{q}_{\mu}^{(u)} + \tilde{K}_{\mu} q_{\mu}^{(u)} + \sum_{j=1}^{N_2} \tilde{C}_{\mu j} \dot{q}_j^{(u)} - \sum_{j_1=1}^{N_2} \sum_{j_2=1}^{j_2 \leq j_1} \tilde{\alpha}_{j_1 j_2}^{(\mu)} q_{j_1}^{(u)} q_{j_2}^{(u)} - \sum_{j_1=1}^{N_1} \sum_{j_2=1}^{j_2 \leq j_1} \tilde{\beta}_{j_1 j_2}^{(\mu)} q_{j_1}^{(v)} q_{j_2}^{(v)} - \\ & \sum_{j_1=1}^{N_2} \sum_{j_2=1}^{j_2 \leq j_1} \sum_{j_3=1}^{j_3 \leq j_2} \delta_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)} q_{j_1}^{(u)} q_{j_2}^{(u)} q_{j_3}^{(u)} - \sum_{j_1=1}^{N_2} \sum_{j_2=1}^{N_1} \sum_{j_3=1}^{j_3 \leq j_2} \tilde{\beta}_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)} q_{j_1}^{(u)} q_{j_2}^{(v)} q_{j_3}^{(v)} = 0; \quad \mu = 1, \dots, N_2, \end{aligned} \tag{20}$$

where the matrixes elements  $A_{\mu j}, K_{\mu j}, C_{\mu j}$  are treated in the previous sections; the values  $\alpha_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)}, \beta_{j_1 j_2}^{(\mu)}, \beta_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)}, \tilde{\alpha}_{j_1 j_2}^{(\mu)}, \tilde{\beta}_{j_1 j_2}^{(\mu)}, \delta_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)}, \tilde{\beta}_{j_1 j_2 j_3}^{(\mu)}$  depends on the system parameters.

Thus, the nonlinear dynamical system (19, 20), which describes the self-sustained vibrations of the nanotube conveying fluid, is derived. The harmonic balanced method [22] is used to study the self-sustained vibrations. Then the vibrations take the form:

$$q_i^{(v)} = A_i^{(v)} + A_i^{(v,s)} \sin(\omega\tau) + B_i^{(v)} \cos(\omega\tau); i = 1, \dots, N_1;$$

$$q_i^{(u)} = A_i^{(u)} + A_i^{(u,s)} \sin(\omega\tau) + B_i^{(u)} \cos(\omega\tau); i = 1, \dots, N_2. \tag{21}$$

Note, that one amplitude parameter from (21) for the autonomous system (19, 20) can be taken equal to zero. For example,  $B_1^{(v)} = 0$ . In order to prove this, the motion  $q_1^{(v)}$  is rewritten as:  $q_1^{(v)} = A_1^{(v)} + \tilde{A}_1 \sin(\omega\tau + \varphi)$ . The dynamical system (19, 20) is autonomous. Therefore, the following change of the variable is used  $\tau \rightarrow \tau + \frac{\varphi}{\omega}$ . Then the equation  $B_1^{(v)} = 0$  is true.

The amplitude parameters (21) are merged into the vector  $\mathbf{A}$  of  $3(N_1 + N_2)$  dimension:  $\mathbf{A} = [A_1^{(v)}, A_1^{(v,s)}, \dots, A_{N_1}^{(v)}, A_{N_1}^{(v,s)}, A_{N_1}^{(v)}, A_1^{(u)}, \dots, A_{N_2}^{(u,s)}, A_{N_2}^{(u)}]$ . Following the harmonic balanced method, the solutions (21) are substituted into the equations (19, 20) and the amplitudes at the same harmonics are equated. As a result, the system of  $3(N_1 + N_2)$  nonlinear algebraic equations is presented in the form:

$$G_j(A, \omega, \bar{U}_*) = 0; j = 1, \dots, 3(N_1 + N_2). \tag{22}$$

The goal of these calculations is to obtain the bifurcation diagrams, which show the dependence of the limit cycles amplitudes on the fluid velocity  $\bar{U}_*$ . In order to obtain this dependence, the system of the nonlinear algebraic equations (22) is solved numerically for different values of the parameter  $\bar{U}_*$ .

## RESULTS OF NUMERICAL SIMULATIONS

### Analysis of equilibrium stability

The CNT, which is treated in [2], is considered to verify the method of dynamic instability calculations. The density of CNT material and the Young modulus are the following:  $\rho_{CNT} = 2.39 \text{ g/cm}^3$  and  $E = 1 \text{ TPa}$ . The fluid density is taken as:  $\rho_w = 1.0 \text{ g/cm}^3$ . The thickness of the nanotube and the radius of the middle surface are  $h = 20 \text{ nm}$  and  $R = 30 \text{ nm}$ . The nanotube with these parameters is called case I.

The origin of the nanotube dynamic instability with the aspect ratio  $\frac{L}{2R} = 66.67$  is analyzed. The nonlocal elasticity is not accounted in these calculations ( $e_0 a = 0$ ). The fluid velocity, when the dynamic instability starts, is called critical. This velocity is denoted by  $U_{cr}$ . The dynamical system (16) with 2, 3, 4, 5 and 6 degrees of freedom is analyzed to calculate the fluid critical velocity. The fluid critical velocities  $U_{cr}$  are presented in Table 1.

Table 1.

The fluid critical velocities (case I)

aspect ratio, $\frac{L}{2R}$	$N_1$	$U_{cr}, \text{ m/s}$	$\tilde{U}_{cr}, \text{ m/s}$	$\delta$	$U_{cr}^{(nonl)}, \text{ m/s}$
66.67	2	1492.35	1510	0.011	-
66.67	3	1515.32		0.0035	1515.01
66.67	4	1512.87		0.0019	1512.87
66.67	5	1511.95		0.0013	1512.25
66.67	6	1512.56		0.0017	1511.95
13.33	2	7461.76	7560	0.013	-
13.33	3	7576.57		0.0022	7576.58
13.33	4	7564.33		5.73e-4	7564.33
13.33	5	7559.74		3.44e-5	7559.74
13.33	6	7561.26		1.67e-4	7561.27

The values of the nanotube aspect ratio  $\frac{L}{2R}$  are shown in the first column of the Table and the numbers of the system (16) degrees of freedom  $N_1$  are presented in the second column of the Table. The fluid critical velocities  $U_{cr}$  are shown on the third column. The values of the critical velocities, which are published in the paper [2], are presented in the fourth column. The relative differences of the critical velocities are calculated as:  $\delta = \frac{|U_{cr} - \tilde{U}_{cr}|}{\tilde{U}_{cr}}$ . Thus, the critical velocities of the nanotubes with the aspect ratio  $\frac{L}{2R} = 66.67$  are close for the dynamical systems (16) with 3 ÷ 6 degrees

of freedom. Moreover, these critical velocities are very close to the data, which are published in [2]. Thus, the convergence of the critical flow velocities is observed, when the number of degrees of freedom is increased.

The fluid critical velocities in the nanotube with the aspect ratio  $\frac{L}{2R} = 13.33$  are analyzed. The nonlocal elasticity is not taken into account ( $e_0 a = 0$ ). The results of the critical fluid velocity calculations are shown in Table 1. As follows from the Table, the results, which are obtained from 3 ÷ 6 degrees of freedom dynamical system (16), and the data from [2] are close. Thus, the convergence of the obtained results is observed.

Table 2.

The fluid critical velocities (case II)				
aspect ratio, $\frac{L}{2R}$	$N_1$	$U_{cr}, m/s$	$\tilde{U}_{cr}, m/s$	$\delta$
55.56	2	1169.95	1360	0.14
55.56	3	1385.91		0.019
55.56	4	1377.09		0,012
55.56	5	1363.88		0.0028
55.56	6	1361.91		0.0014
11.11	2	5850.53	6800	0,14
11.11	3	6928.77		0,018
11.11	4	6885.49		0,013
11.11	5	6819.43		0,0014
11.11	6	6809.55		0,0014

The nanotube with the radius of the middle surface  $R = 45 \text{ nm}$  and  $h = 10 \text{ nm}$  is considered. The density of the nanotube material, fluid and the Young modulus are equal to the corresponding parameters of the case I. The nanotube with such parameters is called case II. The dynamic instability of this nanotube is analyzed. The results of the critical velocities calculations for the nanotubes with the aspect ratio  $\frac{L}{2R} = 55.56$  are presented in Table 2. The designation of the Tables 1 and 2 columns are the same. The fluid critical velocities, which are obtained from 4 ÷ 6 degrees of freedom dynamical system (16), and the ones from the paper [2] are close. The results of the critical velocities calculations for the nanotube with the aspect ratio  $\frac{L}{2R} = 11.11$  are shown on Table 2 too. As follows from this Table, 4 ÷ 6 degrees of freedom are enough to predict the critical fluid velocities. Thus, the convergence of the critical velocities values is obtained, when the number of degrees of freedom  $N_1$  is increased.

As follows from the numerical analysis, if the fluid velocity  $\bar{U}_*$  and the critical velocity  $\bar{U}_{cr}$  satisfy the inequality:

$$\bar{U}_* > \bar{U}_{cr},$$

then the dynamic instability of the trivial equilibrium is observed.

### Self-sustained vibrations analysis

The geometrical nonlinear longitudinal-flexural self-sustained vibrations of the nanotube are analyzed. The following parameters of the nanotube are used:

$$h = 20 \text{ nm}; E = 1 \text{ TPa}; R = 30 \text{ nm}; \rho_w = 1 \text{ g/cm}^3; \frac{L}{2R} = 66.67; e_0 a = 0.934 \text{ mn}; R_{ext} = 40 \text{ nm}; R_{int} = 20 \text{ nm},$$

where  $R_{ext}$  is external radius of the nanotube;  $R_{int}$  is internal radius of nanotube. The dynamic instability of this nanotube is treated at the beginning of this Section. In order to analyze the numerical results, the harmonic approximation of the self-sustained vibrations (21) takes the form:

$$q_i^{(v)} = A_i^{(v)} + A_*^{(i)} \sin(\omega\tau + \varphi_i); q_i^{(u)} = A_i^{(u)} + B_*^{(i)} \sin(\omega\tau + \theta_i). \quad (23)$$

The harmonic balanced method is applied to analyze the self-sustained vibrations of the nanotube. The system of the nonlinear algebraic equations (22) is solved numerically for different values of the fluid motions  $\bar{U}_*$ . The calculations are performed with  $N_1 = 5$ ;  $N_2 = 4$  of the expansions (15, 18). Thus, the nonlinear dynamical system consists of five equations (19) and four equations (20). Therefore, the system of the nonlinear algebraic equations (22) has dimension 27.

As follows from the numerical analysis, the self-sustained vibrations are originated at the fluid critical velocity  $\bar{U}_* = \bar{U}_{cr}$ . If the fluid velocity  $\bar{U}_*$  is increased and passed through the value  $\bar{U}_{cr}$ , the nanotube trivial equilibrium loses stability. The Hopf bifurcation takes place in the point of the stability loss. The limit cycle originates in this point. The data of this limit cycle numerical simulations are treated. The self-sustained vibrations are approximated accurately by

one harmonic (21). The flexural self-sustained vibrations  $q_i^{(v)}$  have zero constant part  $A_i^{(v)} \equiv 0$  and the longitudinal motions  $q_i^{(u)}$  describe the static behavior of the nanotube:  $B_*^{(i)} = 0$ ;  $A_i^{(u)} \neq 0$ . The convergence of the solution (15) is analyzed. The results of the convergence analysis are presented in Table 3, where the amplitudes of the self-sustained vibrations  $A_*^{(i)}$  are shown for different values of the fluid motions. As follows from this Table, if the numbers of the generalized coordinates  $q_i^{(v)}$  are increased, the amplitudes of the self-sustained vibrations are decreased quickly. As follows from Table 3, the following estimation is satisfied:  $\frac{A_*^{(5)}}{A_*^{(1)}} \sim 10^{-3}$ . Thus, the quick convergence of the solutions is observed.

Therefore,  $N_1 = 5$  is enough to obtain the reliable results.

Table 3.

The convergence of the periodic vibrations

	$\bar{U}_* = 6.6$	$\bar{U}_* = 6.2$	$\bar{U}_* = 5.8$	$\bar{U}_* = 5.4$
$A_*^{(1)}$	1.86592	1.52838	1.183594	0.8093442
$A_*^{(2)}$	0.79684	0.67386	0.540521	0.3840375
$A_*^{(3)}$	0.02912	0.02359	0.018422	0.0129016
$A_*^{(4)}$	0.01406	0.01078	0.007778	0.0049201
$A_*^{(5)}$	0.00248	0.00195	0.001445	0.0009400

The bifurcation diagram of the self-sustained vibrations is shown on Fig. 2.

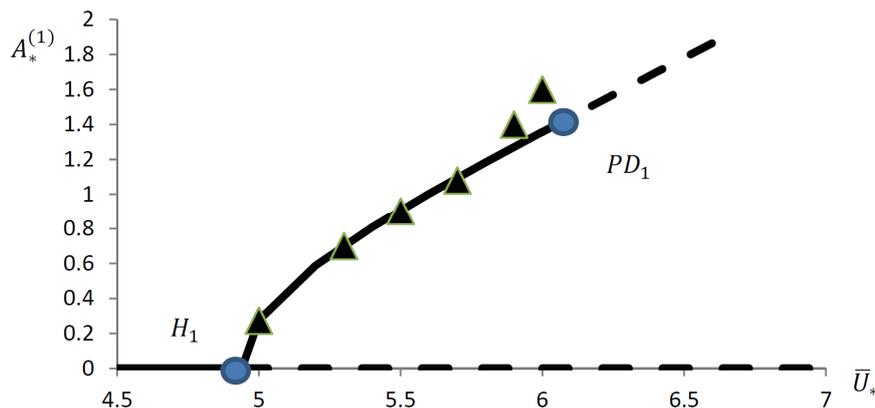


Fig.2. The bifurcation diagram of the self-sustained vibrations

The stable and unstable motions are shown by solid and dotted curves, respectively. The amplitudes of the vibrations  $q_1^{(v)}$ , which are denoted by  $A_*^{(1)}$ , are shown on Fig.2. The Hopf bifurcation  $H_1$  (Fig. 2) is denoted by small circle. The trivial equilibriums are shown on Fig.2 by the lines, which coincide with abscissa axes. This equilibrium is stable at  $\bar{U}_* < 4.95$  and it is unstable at  $\bar{U}_* > 4.94$ . The solid lines ( $H_1 PD_1$ ) (Fig. 2) shows the stable self-sustained vibrations, which undergo the periodic doubling bifurcation in the point  $PD_1$ . The direct numerical integrations of the equations (19, 20) are performed to verify the results, which are obtained by the harmonic balanced method. These data are shown on Fig.2 by small triangles. Moreover, the results, which are obtained by the harmonic balanced method and the direct numerical integrations, are close. If the fluid velocity is increased, the self-sustained vibrations frequency is decreased. The dependence of the self-sustained vibrations frequency  $\omega$  on the fluid velocity  $\bar{U}_*$  is shown on Fig.3.

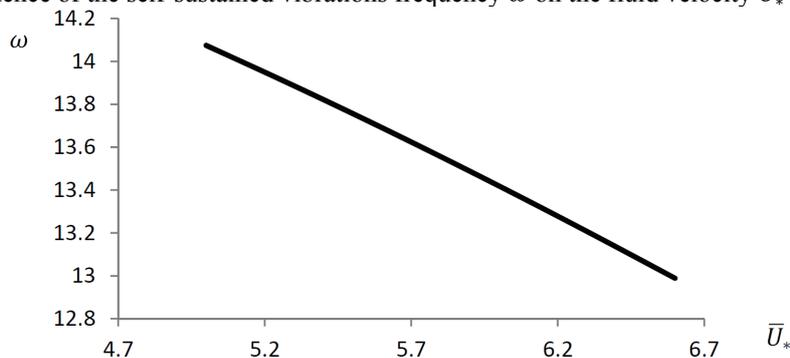


Fig.3. The dependence of the self-sustained vibrations frequency on the fluid velocity.

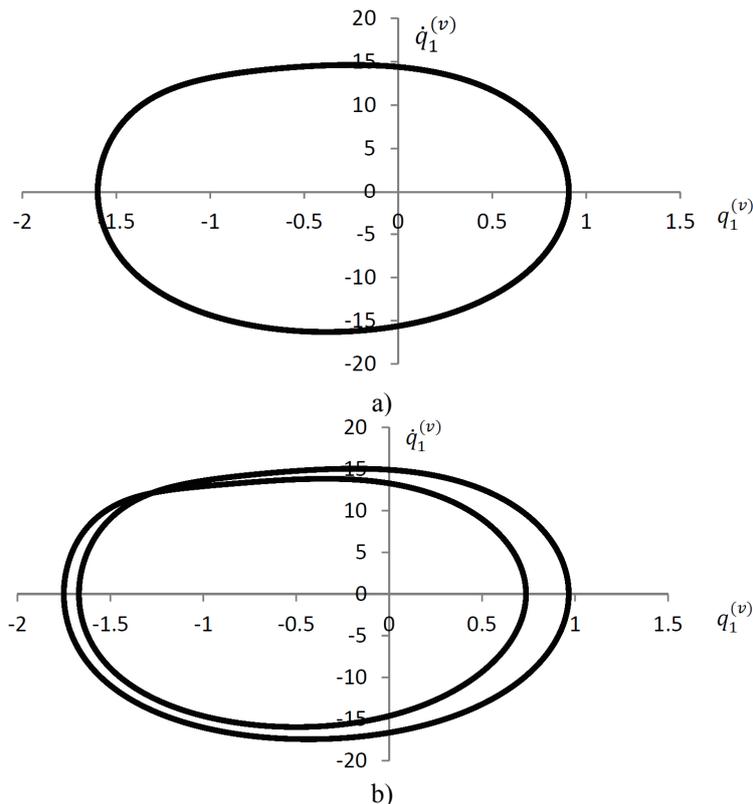


Fig.4. The phase trajectories of the self-sustained vibrations at the following fluid velocities  
a -  $\bar{U}_* = 6.0$ ; b -  $\bar{U}_* = 6.1$ .

The period-doubling bifurcation is observed in the point  $PD_1$  (Fig. 2). Thereafter, the infinite sequence of the period-doubling bifurcations is observed. As a result of this infinite sequence, the chaotic motions originate. The direct numerical integrations of the equations (19, 20) are performed for different values of the flow velocities  $\bar{U}_*$  to identify this bifurcation sequence. The results of such calculations are shown on Fig.4, where the phase trajectories on the plane  $(q_1^{(v)}, \dot{q}_1^{(v)})$  are shown. As follows from this Figure, the single-cycle is observed at  $\bar{U}_* = 6.0$ . If the fluid velocity  $\bar{U}_*$  is increased, the period-doubling bifurcation is observed. Fig.4b shows two-cycle at  $\bar{U}_* = 6.1$ . If  $\bar{U}_*$  is increased, one more period-doubling bifurcation is observed numerically. Four-cycle originates owing to this bifurcation. As a result of the infinite sequence of these bifurcations, the chaotic motions are observed. The Poincare sections are calculated to analyze the self-sustained chaotic vibrations. The intersections of the trajectory with the hypersurface

$$\Sigma = \{(q_1^{(v)}, \dots, q_{N_1}^{(v)}, q_1^{(u)}, \dots, q_{N_2}^{(u)}, \dot{q}_1^{(v)}, \dots, \dot{q}_{N_1}^{(v)}, \dot{q}_1^{(u)}, \dots, \dot{q}_{N_2}^{(u)}) \in R^{2N_1+2N_2} | \dot{q}_1^{(v)} = 0\}$$

are determined numerically. The Poincare sections of the chaotic self-sustained vibrations at  $\bar{U}_* = 6.2$  are shown on Fig.5. The strange attractor on the planes  $(q_2^{(v)}, q_3^{(v)})$  is shown on this Figure. As an example, Fig.6 shows the chaotic self-sustained vibrations  $q_1^{(v)}(t)$  at the fluid velocity  $\bar{U}_* = 6.2$ .

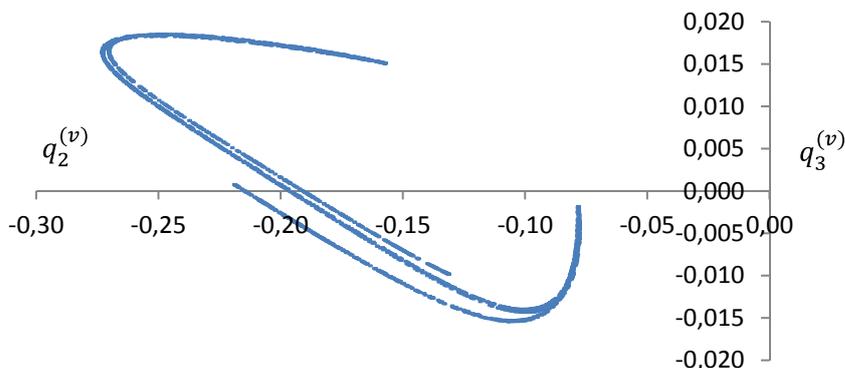


Fig.5. The projections of the Poincare sections at  $\bar{U}_* = 6.2$  on the planes  $(q_2^{(v)}, q_3^{(v)})$ .

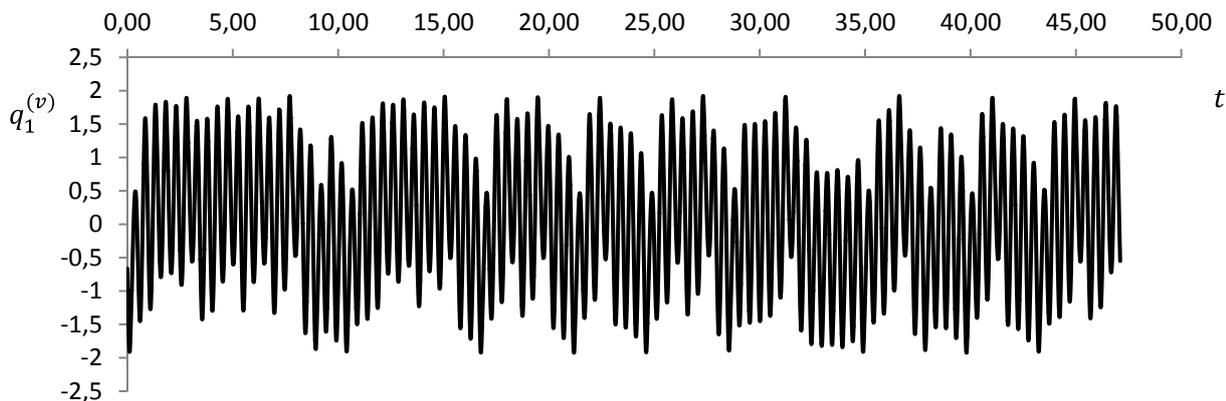


Fig.6. Chaotic self-sustained vibrations at  $\bar{U}_* = 6.2$ .

### CONCLUSION

The model of the longitudinal-flexural self-sustained vibrations of the cantilever nanotube conveying fluid is derived. This model is the system of the nonlinear ordinary differential equations. The system of two nonlinear partial differential equations, describing the longitudinal-flexural self-sustained vibrations, is obtained. The geometric nonlinearity and the nonlocal elasticity are accounted in this system.

The harmonic balanced method is applied to analyze the harmonic self-sustained vibrations in the nonlinear dynamical system. As a result of this method application, the calculations of the self-sustained vibrations are reduced to the system of the nonlinear algebraic equations with respect to the vibrations amplitudes.

The self-sustained vibrations of the nanotube conveying fluid are analyzed. The vibrations of the nanotube are close to monoharmonic. The harmonic balanced method with the monoharmonic approximation of the vibrations is used. In this case, the self-sustained vibrations are flexural and the nanotube static tension is observed in the longitudinal direction. If the fluid velocity is increased, these harmonic self-sustained vibrations undergo the infinite sequence of the period-doubling bifurcations and these self-sustained vibrations are transformed into chaotic ones.

### REFERENCES

1. Yoon J., Ru C.Q., Mioduchowski A. Vibration and instability of carbon nanotubes conveying fluid // *Comp. Scien. and Techn.* - 2005. - Vol. 65. - P. 1326–1336.
2. Yoon J., Ru C.Q., Mioduchowski A. Flow-induced flutter instability of cantilever carbon nanotubes // *Int. J. of Solids and Struc.* - 2006. - Vol. 43. - P. 3337–3349.
3. Wang L., Ni Q., Li M., Qian Q. The thermal effect on vibration and instability of carbon nanotubes conveying fluid // *Phys. E.* - 2008. - Vol. 40. - P. 3179–3182.
4. Wang L., Ni Q. A reappraisal of the computational modeling of carbon nanotubes conveying viscous fluid // *Mech. Res. Comm.* - 2009. - Vol. 36. - P. 833–837.
5. Reddy C.D., Lu C., Rajendran S., Liew K.M. Free vibration analysis of fluid-conveying single-walled carbon nanotubes // *Appl. Phys. Lett.* - 2007. - Vol. 90. - P. 133122.
6. Khosravian N., Rafii-Tabar H. Computational modeling of the flow of viscous fluids in carbon nanotubes // *J. Phys. D: Appl. Phys.* - 2007. - Vol. 40. - P. 7046–7052.
7. Wang L. Vibration and instability analysis of tubular nano- and micro-beams conveying fluid using nonlocal elastic theory // *Phys. E.* - 2009. - Vol. 41. - P. 1835–1840.
8. Lee H.-L., Chang W.-J. Free transverse vibration of the fluid-conveying single-walled carbon nanotube using nonlocal elastic theory // *J. of Appl. Phys.* - 2008. - Vol. 103. - P. 024302.
9. Lee H.-L., Chang W.-J. Vibration analysis of a viscous-fluid-conveying single-walled carbon nanotube embedded in an elastic medium // *Phys. E.* - 2009. - Vol. 41. - P. 529–532.
10. Ghavanloo E., Daneshmand F., Rafiei M. Vibration and instability analysis of carbon nanotubes conveying fluid and resting on a linear viscoelastic Winkler foundation // *Phys. E.* - 2010. - Vol. 42. - P. 2218–2224.
11. Chang W.-J., Lee H.-L. Free vibration of a single-walled carbon nanotube containing a fluid flow using the Timoshenko beam model // *Phys. Lett. A.* - 2009. - Vol. 373. - P. 982–985.
12. Chang T.-P., Liu M.-F. Small scale effect on flow-induced instability of double-walled carbon nanotubes // *Europ. J. of Mech. A/Solids.* - 2011. - Vol. 30. - P. 992–998.
13. Chang T.-P., Liu M.-F. Flow-induced instability of double-walled carbon nanotubes based on nonlocal elasticity theory // *Phys. E.* - 2011. - Vol. 43. - P. 1419–1426.
14. Yan Y., He X.Q., Zhang L.X., Wang C.M. Dynamic behavior of triple-walled carbon nanotubes conveying fluid // *J. of Sound and Vibr.* - 2009. - Vol. 319. - P. 1003–1018.
15. He X.Q., Wang C.M., Yan Y., Zhang L.X., Nie G.H. Pressure dependence of the instability of multiwalled carbon nanotubes conveying fluids // *Arch. Appl. Mech.* - 2008. - Vol. 78. - P. 637–648.
16. Khosravian N., Rafii-Tabar H. Computational modeling of a non-viscous fluid flow in a multi-walled carbon nanotube modeled

- as a Timoshenko beam // *Nanotechnology*. – 2008. – Vol. 19. – 275703.
17. Peddieson J., Buchanan G.R., McNitt R.P. Application of nonlocal continuum models to nanotechnology // *Int. J. of Engin. Sc.* – 2003. – Vol. 41. – P. 305–312.
  18. Eringen A.C., Edelen D.G.B. On nonlocal elasticity // *Int. J. of Engin. Sc.* – 1972. – Vol. 10. – P. 233-248.
  19. Semler C., Li G.X., Païdoussis M.P. The non-linear equations of motion of pipes conveying fluid // *J. of Sound and Vibr.* – 1994. – Vol. 169. – P. 577-599.
  20. Benjamin T.B. Dynamics of a system of articulated pipes conveying fluid // *Proc. of the Royal Soc. A.* – 1961. – Vol. 261. – P. 457-586.
  21. Adali S. Variational principles for transversely vibrating multiwalled carbon nanotubes based on nonlocal Euler-Bernoulli beam model // *Nano Letters*. – 2009. – Vol. 9. – P. 1737-1741.
  22. Avramov K.V., Borysiuk O.V. Nonlinear dynamics of one disk asymmetrical rotor supported by two journal bearings // *Nonl. Dyn.* – 2011. – Vol. 67. – P. 1201-1219.

PACS: 42 Dp; 42.15Fr; 42.15.-j; 42.00.00

## ABOUT THE INFORMATIVE PARAMETERS OF MICHELSON INTERFEROMETERS WITH THE DIVISION OF AMPLITUDE AND THE WAVE FRONT

V.M. Svishch

National Aerospace University "Kharkiv Aviation Institute"  
17, Chkalova St., Kharkiv, 61070, Ukraine

E-mail: [vladimir.svishch@rambler.ru](mailto:vladimir.svishch@rambler.ru), <https://orcid.org/0000-0003-2903-5744>

Received May 12; revised June 16; accepted July 18, 2018

At consideration of the theory of the Michelson's experiment and conducting experiments on its scheme of dividing the amplitude of the light flux as an informative parameter, the difference  $\Delta L$  in the lengths of the paths of the transverse and longitudinal rays of the light flux is used by measuring the shift of the interference pattern of the transverse and longitudinal rays. The significance of the other circuit parameters in determining the influence of the Earth's speed with the help of Michelson interferometers was not considered. The analysis of the parameters of the schemes of Michelson interferometers with the division of both the wave front amplitude and its wave front in the reference system associated with the interferometer is carried out in order to determine the influence of the interferometer speed on them. As a result of the analysis of the scheme with the division of amplitude, a linear dependence of the changes in frequency, the width of the reflected rays on the ratio  $v/c$  of the device speed to the speed of light in interferometers. In the Michelson interferometer scheme with wave front division, the difference  $\Delta L$  of paths length and the ray deflection angles are linearly dependent on the ratio of the device speed to the speed of light  $v/c$ . These additional dependences are determined by the collinearity of the reflected rays and the speed of the observer's movement, in contrast to their perpendicularity in the interferometer with the division of the wave front amplitude. As a result of the comparison of the parameters in the reference system associated with the interferometer, it is concluded from their significance that the use of frequency changes, the width of the reflected rays in the interferometer with amplitude division, and the wave front interferometer, the difference in the path lengths  $\Delta L$  of the rays, frequency, angle of deflection and the width of the reflected rays is preferable.

**KEYWORDS:** Michelson interferometer, light aberration, reference system, amplitude and wave front division of the light flux, light-flux frequencies, angle of the ray rejection, width of light stream, device speed.

### ПРО ІНФОРМАТИВНІ ПАРАМЕТРИ ІНТЕРФЕРОМЕТРІВ МАЙКЕЛЬСОНА З РОЗПОДІЛОМ АМПЛІТУДИ І ХВИЛЬОВОГО ФРОНТУ

В.М. Свищ

Харківський національний аерокосмічний університет ім. М.Е. Жуковського «Харківський авіаційний інститут»  
вул. Чкалова 17, Харків, Україна, 61070

При розгляді теорії експерименту Майкельсона і проведенні експериментів по його схемі розподілу амплітуди світлового променя в якості інформативного параметра використовується різниця довжин шляхів поперечного та поздовжнього променів. Інформативність інших параметрів схем при визначенні впливу швидкості руху Землі за допомогою інтерферометрів Майкельсона не розглядалася. Проведено аналіз параметрів схем інтерферометрів Майкельсона з розподілом як амплітуди світлового променя так і його хвильового фронту в системі відліку, пов'язаній з інтерферометром, з метою визначення впливу на них швидкості руху інтерферометрів. В результаті аналізу схеми з розподілом амплітуди показана лінійна залежність змін частоти, ширини відбитих променів від відношення  $v/c$  швидкості приладу до швидкості світла. У схемі інтерферометра Майкельсона з розподілом хвильового фронту додатково лінійно залежать від ставлення швидкості приладу до швидкості світла  $v/c$  різниця  $\Delta L$  довжин шляхів і кути відхилення променів. Ці додаткові залежності визначаються колінеарністю відбитих променів і швидкості руху спостерігача на відмінність їх перпендикулярності в інтерферометрі з поділом амплітуди. В результаті порівняння параметрів в системі відліку, пов'язаній з інтерферометром, за їх інформативністю робиться висновок про перевагу застосування змін частоти, ширини відбитих променів в інтерферометрі з розподілом амплітуди, а в інтерферометрі з розподілом хвильового фронту - різницею довжин шляхів  $\Delta L$  променів, частоти, кута відхилення і ширини відбитих променів.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** швидкість приладу, схеми інтерферометрів Майкельсона, розподіл амплітуди, розподіл хвильового фронту, аберація світла, система відліку, частоти світлових потоків, кут відхилення променя, ширина променя.

### ОБ ИНФОРМАТИВНЫХ ПАРАМЕТРАХ ИНТЕРФЕРОМЕТРОВ МАЙКЕЛЬСОНА С ДЕЛЕНИЕМ АМПЛИТУДЫ И ВОЛНОВОГО ФРОНТА

В.М.Свищ

Харьковский национальный аэрокосмический университет им. М.Е. Жуковского «Харьковский авиационный институт»  
ул. Чкалова 17, Харьков, Украина, 61070

При рассмотрении теории эксперимента Майкельсона и проведении экспериментов по его схеме деления амплитуды светового потока в качестве информативного параметра используется разность длин путей поперечного и продольного лучей. Информативность других параметров при определении влияния скорости движения Земли с помощью интерферометра Майкельсона не рассматривалась. Проведен анализ параметров схем интерферометров Майкельсона с делением как амплитуды светового потока так и его волнового фронта в системе отсчета связанной с интерферометром с целью определения влияния на них скорости движения интерферометра. В результате анализа схемы с делением амплитуды показана линейная зависимость изменений частоты, ширины отраженных лучей от отношения  $v/c$  скорости прибора к скорости света. В схеме интерферометра Майкельсона с делением волнового фронта дополнительно зависят линейно от

отношения  $v/c$  разность длин путей и углы отклонения лучей. Эти дополнительные зависимости определяются коллинеарностью отраженных лучей и скорости движения наблюдателя в отличие от их перпендикулярности в интерферометре с делением амплитуды волнового фронта. В результате сравнения параметров в системе отсчета связанной с интерферометром по их информативности делается вывод о предпочтительности использования изменений частоты, ширины отраженных лучей в интерферометре с делением амплитуды, а в интерферометре с делением волнового фронта - разности длин путей лучей, частоты, угла отклонения и ширины отраженных лучей.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** скорость прибора, схемы интерферометров Майкельсона, деление волнового фронта, деление амплитуды, абберация света, система отсчета, угол отклонения луча, ширина луча.

The Michelson interferometer using the amplitude of the light flux has received a wide application in scientific research and industry. This scheme, comparing the lengths of light flux, Michelson applied in the experiment to determine the motion of the Earth relatively to the ether [1].

In another interferometer for astronomical studies, Michelson realized the scheme with wave front division, but not its amplitude [1, 2]. The scheme proposed by Fizeau was significantly improved and implemented by Michelson while measuring the stars diameters, where the lengths of the light-path paths are also compared. At present, this significantly modified scheme is widely used by astronomers in interferometry with a large base [3].

The informative possibilities of other parameters, except comparing the lengths of the light flux paths, in these schemes were not previously considered.

Purpose of the work is estimation of an information parameters for selection them by using Michelson interferometer.

#### ANALYSIS OF INFORMATIVE PARAMETERS OF THE MICHELSON INTERFEROMETER SCHEME BY DIVIDING THE AMPLITUDE OF THE LIGHT FLUX

Michelson tried to determine the speed of Earth motion relatively to the ether as a medium of light propagation. The science has already said goodbye to such a representation of the ether. However, considering the independence of the speed of light from the speed of the source, Michelson could determine the speed of the Earth relatively to the light flux. Taking it into account, let us consider the possible informative parameters of the Michelson experiment.

More than 130 years passed after the first conduct of the Michelson experiment with its interferometer based on the division of the amplitude of the light flux (Fig. 1), but the interest to its theory and results does not fade. This is evidenced by a periodic repetition of experiments beginning with the Michelson experiment (1881) with an increase in the accuracy of their results and a review of its theory by various authors [3, 4, 5, 7 - 12, 15 - 19].

Further repeated repetitions of the experiment with an increase in accuracy to  $10^{-6}$  and more finally confirmed the negative result of the experiment. This undoubtedly raises the question of the theory of the experiment, which predicts significant shifts in the interference pattern up to units of the interference fringe.

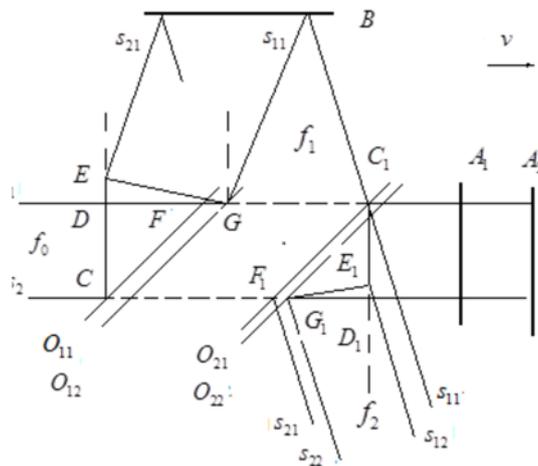


Fig. 1. The path of the rays, taking into account their widths in the reference system associated with the light fluxes in the interferometer with the division of the amplitude of the wave front

The theory of the experiment since Michelson was repeatedly considered by many authors [3, 5, 7 - 11, 14 - 19]. In all these studies, the expected shift in the pattern of the picture is confirmed by a value of the second order  $2L \frac{v^2}{c^2}$  ( $L$  - the length of the arm of the interferometer,  $v$  - the speed of the interferometer in the direction of the longitudinal arm of the interferometer,  $c$  - the speed of light). However, they did not analyze the effect of the deviation of the transverse ray on the expected result of the experiment of its cause.

The problem of the reflection of light from a moving mirror was first considered by A. Einstein [4]. At first in this work A. Einstein recounts frequency, angle of incidence and amplitude of the light stream from the coordinate system with the mirror moving in it to the coordinate system where the mirror is immobile. In this system he determines the

quantities related to the reflected wave. Then he performs a reverse transition to the coordinate system with the moving mirror. The problem is solved in general form without taking into account the ray width.

Later [5] while analyzing the Michelson's experiment with an interferometer, based on the division of the amplitude of the light flux, Sommerfeld unambiguously indicates the aberration of the light flux on a semitransparent mirror. This aberration provides meeting of the transverse and longitudinal rays in the system with the immobile mirror based on a mirror shifted relatively to the light flux and entering it in the observer's tube.

"On the contrary, the angle  $\alpha'$  differs in the primed system on a small value of the first order (we can call it the aberration angle);" P.104 "The fact that light exactly falls into the shifted observer's B telescope is provided by changing the law of reflection when reflected from a moving mirror  $H$  in its position  $H''$ "[5].

However, he does not analyze the effect of the aberration angle on a moving mirror with an active change in the direction of the reflected light flux on the measurement results.

Such analysis was given in by Sokolov [10] with the construction of the wave front of a transverse light flux. The result of his analysis indicates the complete equality of the paths of the transverse and longitudinal rays. Thus, the expected shift of interference fringes due to equality of paths should be absent.

The determination of the difference in the lengths  $\Delta L$  of the paths of the transverse and longitudinal rays of the light flux by measuring the shift of the interference pattern of the transverse and longitudinal rays is an informative parameter with all the considerations of the theory of the Michelson's experiment and the conduction of experiments. The results of numerous experiments using this informative parameter in the Michelson scheme unambiguously indicate the absence of difference  $\Delta L$  as a result of Lorentz's contraction of the longitudinal dimensions of the interferometer or due to the equality of the compared optical paths.

$$\Delta L = 0 . \tag{1}$$

Let's consider other possible informative parameters of the scheme with allowance for the aberration of light on the mirrors - the widths and angles of the deviation of the transverse and longitudinal rays, the difference in their frequencies. To do this, let's analyze the experimental scheme in the reference system associated with the light fluxes (Fig. 1) and in the reference frame associated with the mirrors (Fig. 2).

Fig. 1 shows the Michelson's scheme, taking into account the finite width of the light fluxes in the plane of their propagation.

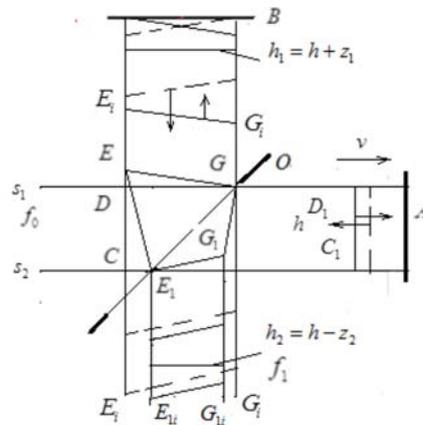


Fig. 2. The path of the rays, taking into account their widths in the reference system associated with the interferometer with division of the amplitude of the wave front

Here,  $s_1, s_2$  are the outermost rays of the initial light flux with a frequency  $f_0$  with width  $CD = h$ ,  $O_{11}, O_{12}, O_{21}, O_{22}$  - the positions at different times with respect to the transverse light flux of the translucent mirror O, mounted at an angle  $45^\circ$  to the light flux CD, A, B - the blind mirrors,  $v$  - the speed of the system in the direction of light flux CD propagation.

The wave front of the light stream CD hits the mirror O in position  $O_{11}$  when the ray  $s_2$  is reflected from the mirror at a point C, and the ray  $s_1$  from the point D will still catch up with the mirror O till the point G in position  $O_{12}$ . During the time of passage of the ray  $s_1$  of the wave front CD of the path DG (Fig. 1) the mirror O moves from position  $O_{11}$  to position  $O_{12}$  and the ray  $s_1$  reflects from the mirror O at the position  $O_{12}$  at the point G. Let's the displacement of the mirror O from the position  $O_{11}$  to the position  $O_{12}$  equal to FG will be equal to  $z_1$ , and the transit time of the ray  $s_1$  of the path  $DG = DF + FG$  will be equal to  $t_1$ . Then the ray  $s_2$  for the time  $t_1$  after the reflection from the mirror O in the position  $O_{11}$  will pass the path  $CE = CD + DE = DF + FG = h_1 = h + z_1$ . The wave front CD after reflection from the mirror O in accordance with the construction on the basis of the Huygens-Fresnel principle will be EG. This

wave front EG is rotated relatively to the direction CE by  $\angle\beta t g\beta = \frac{DE}{DG}$ ,  $DE = FG$ ,  $\frac{DG}{c} = \frac{FG}{v}$ . Without taking into account second-order quantities

$$t g\beta = \frac{v}{c}. \quad (2)$$

Further, reflecting from the mirror B at an angle  $-\angle\beta$ , the wave front overtakes the mirror O in position  $O_{21}$  at this angle. The width of the reflected wave front will be  $EG > DG = h_1$

$$h_1 = h + z_1. \quad (3)$$

On the other hand, on the mirror O in the position  $O_{21}$  the wave front  $C_1D_1$  comes of the part of the initial light flux reflected by the blind mirror A in position  $A_2$ . Its ray  $s_1$  is reflected from the mirror O in the position  $O_{21}$  at the point  $C_1$  spreading in the direction  $C_1D_1$ . The ray  $s_2$  hits the mirror O, which has shifted to  $F_1G_1 = z_2$  during the time  $t_2$  the ray  $s_2$  travels the path  $D_1G_1$  to the position  $O_{22}$ , at the point  $G_1$ . During the same time  $t_2$ , the ray  $s_1$ , reflected from the mirror O in the position  $O_{21}$  at the point  $C_1$ , will pass the path  $C_1E_1 = C_1D_1 - F_1G_1$ . Since  $F_1G_1 = z_2$ , then the path of the ray  $s_1$   $C_1D_1 = C_1E_1 = h_2 = h - z_2$ . Width of the reflected wave front  $C_1E_1 > D_1G_1 = h_2$

$$h_2 = h - z_2. \quad (4)$$

The wave front  $C_1D_1$  after reflection from the mirror O will become  $E_1G_1$ , in accordance with the construction on the basis of the Huygens-Fresnel's principle. It will be deployed on  $\angle -\beta t g\beta = \frac{D_1E_1}{D_1G_1} t g\beta = v/c$ , and spread at the same angle with the wave front CD

$$t g\beta = \frac{v}{c}. \quad (5)$$

Let us consider in more detail the width of the transverse and longitudinal wave fronts in the plane of propagation of the light fluxes (Fig. 1).

Let's denote the width of the wave fronts in the plane of propagation of the incident (original)  $L = h = DC = D_1C_1$  transverse  $H_1 = EG$ ,  $H_2 = E_1G_1$ ,  $\frac{DG}{c} = t_1$ ,  $\frac{D_1G_1}{c} = t_2$   $z_1 = FG = ED$   $z_2 = F_1G_1 = E_1D_1$  light fluxes.

The width of the rays formed by the reflected wave fronts, hence  $h_1 = h + z_1$ ,  $h_2 = h - z_2$ .

So the width of the wave fronts is bigger than the width of the reflected rays  $H_1 > h + z_1$ ;  $z_1 = vt_1$ ;  $t_1 = \frac{h+z_1}{c}$ ;  $\frac{ED}{EG} = \frac{E_1D_1}{E_1G_1} = \sin\beta$ ;  $\beta = \angle EGD = \angle E_1G_1D_1$ ;  $\sin\beta \approx t g\beta = \frac{ED}{DG} = \frac{E_1D_1}{D_1G_1}$ ;  $\sin\beta = \frac{v}{c}$ ;  $z_1 c = vh + vz_1$ ;  $z_1 = \frac{hv}{c-v}$ ;  $H_1 = \frac{z_1}{\sin\beta}$ ,  $H_1 = z_1 \frac{c}{v}$ ;  $H_1 = \frac{hc}{c-v}$ .

On the other hand,  $H_2 > h - z_2$ ;  $z_2 = vt_2$ ;  $t_2 = \frac{h-z_2}{c+v}$ ;  $z_2 = h \frac{v}{c+v}$ ;  $H_2 = \frac{z_2 c}{v}$ ;  $H_2 = \frac{hc}{c+v}$ .

The difference in the width of the reflected wave fronts will also be  $\Delta H = H_1 - H_2$ ;  $\Delta H = \frac{hc}{c-v} - \frac{hc}{c+v} = hc \frac{c+v-c+v}{c^2-v^2} = 2h \frac{vc}{c^2-v^2}$ .

Thus, the width of the reflected wave fronts differs in the value of the first order

$$\Delta H > 2h \frac{v}{c}. \quad (6)$$

The change in the angle  $\angle\beta$  of deflection of the reflected light flux can be another informative parameter.

As Sommerfeld showed the angle of reflection won't change at reflection from deaf mirrors in the longitudinal and transverse arms of the interferometer. The angles of reflection will change only at a reflection from a semitransparent mirror [5].

A detailed analysis of the deviation of the reflected light flux from the reflector in a system with a moving reflector is given in [4,5,10,12].

Unlike passive aberration in a telescope, where the light flux does not change its direction, and the telescope adjusts to the observation conditions, the light aberration on the moving mirror is active, as the reflected light flux changes direction in comparison with the direction at reflection from the stationary mirror.

In A. Michelson's experiment, the mirror moves with the observer (the system  $k$  by A. Einstein). Its results can be interpreted as confirming the difference in the angles of incidence and reflection on a mirror moving with the observer - the angle of reflection in the transverse arm is not equal to  $45^\circ$ .

Vavilov directly indicates the magnitude of the deviation  $v/c$  of this angle.

"The ray  $sa$  will be reflected along  $ab$  (Fig. 9.2), thus the angle  $b_1ab$  will be equal to  $v/c$ ; the returning ray will go along  $ba_1$  (angle  $aba_1 = 2v/c$ ) into the focus of the telescope. The ray  $ac$  will return in the previous direction, but,

reflecting from the mirror moving in the ether in  $a_1$ , it will go along the  $a_1e$  (angle  $ca_1e = \frac{\pi}{2} - v/c$ ), coinciding with the first ray. "[11]. The same value is confirmed by the analysis (2, 5)

$$tg\beta = \frac{v}{c}.$$

It would seem that by observing changes in the angle of the coincident ray with the telescope, it is possible to calculate the speed  $v$  relatively to the transverse light flux. Let us therefore consider the path of the rays in the reference system associated with the instrument of observation. In this case, the device moves at a speed  $v$  relatively to the light fluxes due to the independence of their speed of movement from the motion of the light source and the observer (Fig. 2).

The wave front of the light flux  $CD$  hits the mirror  $O$  when the ray  $s_2$  is reflected from the mirror at a point  $C$ , and the ray  $s_1$  will still move from the point  $D$  up to the point  $G$  on the mirror  $O$ . During the time of passage of the ray  $s_1$  of the wave front  $CD$  of the path  $DG$  (Fig. 2), the reflected ray  $s_2$  will lag behind the mirror  $O$  in the reference system connected with the device, pass the path  $CE$  and will be at the point  $E$ . The reflected wave front  $EG$  of the light flux  $CD$  will have a width  $L_1 > h + z_1$  and will be expanded relatively to the direction  $CE$  on  $\angle\beta$  (2). By keeping the turn at an angle  $\angle\beta$ , the wave front  $EG$  will move on a direction  $CE$  perpendicular to the longitudinal ray.

From the moment  $t_0$  after reflection from the mirror  $O$ , the wave front  $EG$  will traverse the path  $ct_i$  at a time  $t_i$  at an angle  $\beta = \arcsin \frac{v}{c}$  to the direction  $CE$  perpendicular to the mirror  $B$  and take up position  $E_iG_i$ . During this same time, the reference system with the mirror  $O$  will shift relatively to the initial position by a distance  $vt_i$  in the direction of the mirror  $A$ . The wave front  $E_iG_i$  at the moment  $t_i$  will be above the mirror  $O$  in the direction of the perpendicular to the mirror  $B$ , since the ratio of displacement  $vt_i$  to path  $ct_i$  is equal  $\sin\beta = \frac{vt_i}{ct_i} = \frac{v}{c}$ .

Consequently, any wave front at each instant of time is on the direction perpendicular to the longitudinal ray.

Thus, the transverse light flux formed from the wave fronts  $E_iG_i$  in the direction of the mirror  $B$  in the observer system will be perpendicular to the longitudinal light flux.

Similarly, the part  $C_1D_1$  of the transmitted through the semitransparent mirror light stream after reflection from the mirrors  $A$  and  $O$  is converted into a light flux with a wave front  $E_1G_1$  unfolded relatively to the direction  $EC$  of  $\angle\beta$ . The ray with width  $h_2 = h - z_2$  formed from the wave fronts  $E_{ii}G_{ii}$  is propagated in conjunction with the light flux  $E_iG_i$  reflected from the mirror  $B$  by a width  $h_1 = h - z_1$  perpendicular to the longitudinal light flux with the width  $h$ . The difference  $\Delta h$  of the width of the rays in the observer system is equal to

$$\Delta h > 2h \frac{v}{c} \tag{7}$$

The angle of observation of the interference picture is also equal to direct in relation to the direction of propagation of the longitudinal ray and does not depend on the speed  $v$  of the observer.

The transverse light flux undergoes two reflections - from set under the angle of  $45^\circ$  semitransparent mirror moving in the direction of propagation of the light flux, and from a deaf mirror moving tangentially to the light flux. As a result of the Doppler effect, when reflected from a semitransparent mirror  $O$ , its frequency changes by  $-\Delta f_1$  and does not change when reflected from a moving tangentially deaf mirror  $B$  [1, 8, 10].

$$f_1 = f_0 - \Delta f_1, \tag{8}$$

where  $f_1$  - is the frequency of the transverse light flux at the output,  $f_0$  - the frequency of the input light flux,  $\Delta f_1$  - frequency change after reflection from the mirror at the angle of incidence  $45^\circ$ , sign  $\pm$  is depending on the direction of the speed  $v$ .

The longitudinal light flux is reflected from the deaf mirror  $A$  moving in the direction of propagation of the light flux and from the semitransparent mirror  $O$  moving towards the propagation of the light flux. The change in the frequency of the light flux reflected by the mirror moving in the direction of propagation of the light flux depends on the angle of incidence nonlinearly. However, if we assume that at an angle of incidence  $0^\circ$  the change in the frequency of the reflected light flux  $\Delta f_2$  is twice as large as its change  $\Delta f_1$  at an angle of incidence  $45^\circ$   $\Delta f_2 = 2\Delta f_1$ , the frequency of the longitudinal light flux  $f_2$  at the output will be

$$f_2 = f_0 - \Delta f_2 + \Delta f_1,$$

where  $f_2$  - is the frequency of the longitudinal luminous flux at the output,  $\Delta f_2$  - the frequency change after reflection from the mirror at an angle of incidence  $0^\circ$ . I.e.:

$$f_2 = f_0 - \Delta f_1. \tag{9}$$

Thus, the frequencies of the transverse and longitudinal light fluxes at the output will be equal, but differ from the frequency of the input light flux

$$f_1 = f_2 = f_0 - \Delta f_1 . \tag{10}$$

If the equality  $\Delta f_2 = 2\Delta f_1$  is not met, then the frequencies of the components of the output light flux will differ slightly from each other. However, their frequencies are still different from the frequency  $f_0$  of the input light flux. Let us consider the informative parameters of the Michelson's interferometer by dividing the wave front.

**ANALYSIS OF INFORMATIVE PARAMETERS OF THE FIZEAU – MICHELSON SCHEME**

Fizeau's scheme actually represents the interferometer according to the Jung's scheme with spaced apart slits for a distance  $D$ . The Michelson replaced the slits with the mirror system [1,5], which ensured the constancy of period of the interference pattern ( $M_3, M_4$ ) and the possibility of adjusting by mirrors ( $M_1, M_2$ ) the correlation of their light fluxes .

Let the mirrors  $M_3, M_4$  be semitransparent and set the screen  $E_2$  at a distance  $d/2$  between them (Fig. 3). The distances between the mirrors  $M_1M_3$  and  $M_2M_4$ , accordingly are equal to  $a_1, a_2$ . Let us perform an analysis of such a scheme of the Michelson's interferometer in a reference system coupled with the interferometer on Fig. 4 when it moves with speed  $v$  in the direction  $M_2M_1$  in the reference system associated with the light fluxes  $s_1 s_2$ .

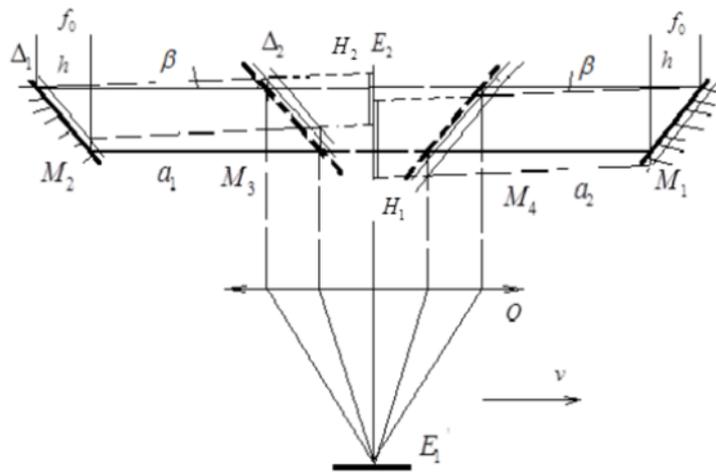


Fig.3. Scheme of the Michelson interferometer with the division of the wave front with semitransparent mirrors  $M_3, M_4$  and a screen  $E_2$

The path of the rays in this reference frame is shown in Fig.4 with designations of the rays identical to Fig. 1,2.

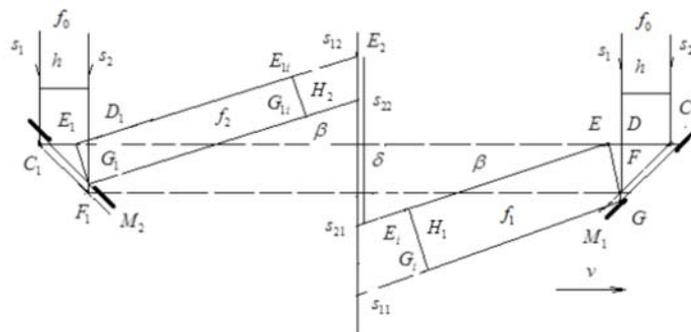


Fig. 4. The path of the rays, taking into account their width with division of the wave front in the reference system associated with the interferometer

The arms  $a_1, a_2$  of the interferometer are directed along the speed  $v$  of its motion. Then, the lengths  $a_{11}, a_{12}$  of paths of the light flux in the reference system associated with the interferometer will accordingly be equal to  $a_{11} = a_1 + \Delta a_1$ ;  $a_{12} = a_2 + \Delta a_1$ , where  $\Delta a_1, \Delta a_2$  – the increases of lengths of light streams paths caused by motion of interferometer.

Similar to the longitudinal arm of the Michelson interferometer (Fig. 1), we have

$$\frac{a_1 + \Delta a_1}{c} = t_1, \Delta a_1 = vt_1, \Delta a_1 = a_1 \frac{v}{c-v}; \frac{a_2 - \Delta a_2}{c} = t_2, \Delta a_2 = vt_2, \Delta a_2 = a_2 \frac{v}{c+v}.$$

$$a_{11} = a_1 \left(1 + \frac{v}{c-v}\right), a_{11} = a_1 \frac{c}{c-v}, a_{12} = a_2 \left(1 - \frac{c}{c+v}\right), a_{12} = a_2 \frac{c}{c+v}.$$

The difference in the paths of the light flux in the arms will be

$$a_1 = a_2 = a \quad \Delta a = a_{11} - a_{12}; \quad \Delta a = a \left(\frac{c}{c-v} - \frac{c}{c+v}\right) = 2a \frac{cv}{c^2 - v^2}; \quad \Delta a > 2a \frac{v}{c}.$$

Or otherwise

$$\Delta a = \Delta a_1 + \Delta a_2 = a \left(\frac{v}{c-v} + \frac{v}{c+v}\right), \Delta a = a \frac{2cv}{c^2 - v^2}, \Delta a > 2a \frac{v}{c} \quad (11)$$

Similarly, when reflected at an angle  $45^\circ$  from the mirrors, the frequency of the light fluxes will change  $f_1 = f_0 - \Delta f_1$ ,  $f_2 = f_0 + \Delta f_1$ . The difference in the frequencies of the light fluxes that fall on the screen  $E_2$  after reflection from the mirrors  $M_1 M_2$  will be

$$\Delta f = 2\Delta f_1. \quad (12)$$

The frequency of the light fluxes on the screen  $E_1$  (Fig. 4) won't change due to additional reflections from the mirrors  $M_3, M_4$ .

With the width  $h = DC = D_1 C_1$  of the separated wave fronts from the common wave front, the reflected rays will have a corresponding width  $H_1 = \frac{hc}{c-v}$ ,  $H_2 = \frac{hc}{c+v}$ .

The width of the reflected rays in the plane of their propagation, as well as in the Michelson's interferometer (Fig. 1) differs by the value  $\Delta H$  (6)

$$\Delta H > 2h \frac{v}{c}. \quad (13)$$

Also the angles of the reflected light fluxes will change in contrast to the scheme with amplitude division (Fig. 2) and in the reference system associated with the interferometer will be

$$\pm\beta = \frac{v}{c}. \quad (14)$$

Accordingly, when they meet on the screen, their cross sections will be displaced in the propagation plane by an value

$$\delta = \left(a + \frac{d}{2}\right) \sin\beta. \quad (15)$$

Let's compare the results of the analysis of the informative parameters of Michelson's interferometers.

The difference  $\Delta L$  of the lengths of the light flux rays paths is observed due to the shift of the interference picture of the interferometer (Fig. 1). It is equal to the zero, taking into account the Lorentz reduction of the longitudinal dimensions of the interferometer or due to the equality of the compared optical paths and confirmed by the results of numerous experiments (1). In the interferometer (Fig. 3,4) this difference is directly proportional to the arms lengths of the interferometer and the ratio  $v/c$  in the first degree (13).

The change in the frequency of the transverse and longitudinal light fluxes when reflected from the moving mirrors in accordance with the Doppler effect of the first interferometer output will be equal, but differ from the frequency of the input light flux (10). In the second interferometer on the screen  $E_1$  they are equal to the frequency of the input light flux, but in the interferometer arms on the screen  $E_2$  they are different (12).

The width of the reflected rays in the plane of propagation in both interferometers differs by one value (6, 13). However, in the interferometer (Fig. 1) they are distributed along the midline, which makes it difficult to measure their difference.

The angle of deflection  $\beta$  of the reflected wave fronts of the light fluxes depends on the ratio  $v/c$  in the first degree also in both interferometers.

However, in the first interferometer when the reflected rays are formed in the reference system associated with the interferometer, the deflection angle is compensated by the lag of the wave fronts. The formed reflected rays are orthogonal to the longitudinal ray (Fig. 2).

In the interferometer (Fig. 3,4) the formed reflected rays are deflected at an angle  $\beta$  since their wave fronts propagate parallel to the speed of the interferometer. Its registration is facilitated by measuring the displacement of the cross sections of the rays on the screen  $E_2$  (15).

Thus, a propagation angle for the speed direction of the device has the significant influence on the informative value of difference of the ways in the reference system, connected with the interferometer, reflected rays and their angles of deflection.

The influence of motion ( $\Delta t, \Delta r$  of the second order  $v^2/c^2$ ) determined by the Lorentz transformations cannot be taken into account when measuring the order values  $v/c$  in view of its comparatively small magnitude.

### CONCLUSIONS

1. In addition to the parameter of the difference  $\Delta L$  in the lengths of the pathways of the light flux rays, the changes in the frequency of the rays of the light flux, their width in the propagation plane and the angle of deviation of the reflected light fluxes have essential informative value.

2. These parameters depend on the ratio  $v/c$  in the first degree in both interferometers except for the parameter of the path length difference  $\Delta L$  and the ray deflection angle in the interferometer (Fig. 1).

3. An essential difference between these schemes, which determines the differences in their informative parameters in the reference system associated with the interferometer, is the orientation of the reflecting mirror with respect to the incident light fluxes and the speed of the device, which determines the direction of propagation of the reflected rays relatively to the speed of the device.

4. Based on the convenience of observation, changes in the frequency, the width of the reflected rays in the interferometer (Fig. 1), and the difference  $\Delta L$  in the path lengths of the rays, the frequency, the deflection angle, the width of the reflected rays in the interferometer (Fig. 3, 4) are the preferred parameters.

### REFERENCES

1. Michelson A. Research on optics. – M.: URSS, 2004. – P.200 (P. 34 -40, 125 – 134).
2. Michelson A., Pease F., Pearson F. Repetition of the Michelson-Morley experiment // JOSA. – 1929. – Vol.18. – No. 3. – P.181-182.
3. Miller D.C., Significance of the ether-drift experiments of 1925 at Mount Wilson // Science. – 1926. – Vol. 63. – P. 433-443.
4. Einstein A. To the electrodynamics of moving bodies. Collected works. – 1987. – Vol. 1. – P. 8-10. 24-31.
5. Sommerfeld A. Vorlesungenuber Teoretische Physik. Rand 4. Optic von Arnold Sommerfeld. – Wisbaden, 1950. – P. 102-114.
6. Lorentz G.A. The theory of Electrons. – Leipzig, 1916. – P. 247 -289.
7. Gimmelfarb B.N. To an Explanation of Stellar Aberration in the Theory of Relativity // Uspechi Physicheskich Nauk. – 1953. – Vol. 51.
8. Frankfurt W.I., Frank A.M. Optics of Moving Bodies. – M.: Nauka, 1972. – P. 76 – 112. (in Russian)
9. Landsberg T.S. General Physics. Optic. – M.: Nauka, 1976. – P. 928. (in Russian)
10. Sokolov V.M. About the inconsistency of the Einstein A. theory of relativity // Modern high technologies. – 2008. – No. 6. P. 35 -40.
11. Vavilov S.I. Experimental foundations of the theory of relativity. Collected works. – M.: PhysMathGiz, 1965. – Vol. 4. – P. 18-35. (in Russian)
12. Bolotovskiy B.M., Stolyarov S.N. Reflection of light from a moving mirror and related problems // Uspechi Physicheskich Nauk. – 1989. – Vol. 159. – No. 1. – P. 155-180. (in Russian)
13. Dubovik A.S., Apenko M.I., Durejko G.V. Applied optics. – M.: Nedra, 1982. –528 p. (in Russian)
14. Report of the Physico-Technical Institute of the Ukrainian Academy of Sciences USSR No. 1021, 1955. The idea of multiple reflection // Journal of Technical Physics. – 1959. – Vol. 29. – P. 491. (in Russian)
15. Lima J.A.S., Sasse F.D. Can Lorentz transformations be determined by the null Michelson-Morley result? (2017) [Arxiv.org/abs/1709.06864](https://arxiv.org/abs/1709.06864)
16. David B. Parke. How to explain the Michelson-Morley experiment in ordinary 3-dimensional space (2010) [ArXiv:1006.4596](https://arxiv.org/abs/1006.4596) [physics.gen-ph]
17. Masanori Sato. Single photon Michelson-Morley experiment via de Broglie-Bohm picture: An interpretation based on the hypothesis of frame dragging (2008) [ArXiv:0801.3138](https://arxiv.org/abs/0801.3138) [physics.gen-ph]
18. Cahill R.T. The Michelson and Morley 1887 Experiment and the Discovery of Absolute Motion (2005) [Arxiv.org/abs/physics/0505001](https://arxiv.org/abs/physics/0505001)
19. Kupriaev N.V. Michelson–Morley experiment and classical mechanics. Reports of independent authors, ed. «DNA». – Russia-Israel, 2005. – Iss. 1.

PACS: 61.05.cm, 61.43.Dq, 68.65.Ac, 41.50.+h, 07.85.Fv

**STRUCTURE AND PHASE COMPOSITION OF W-Si MULTILAYER X-RAY MIRRORS****Yu.P. Pershyn, I.G. Shipkova, O.Yu. Devizenko, V.V. Mamon, V.S. Chumak, V.V. Kondratenko***National Technical University "Kharkiv Polytechnic Institute"  
str. Kyrpychev 2, Kharkiv, 61002, Ukraine**E-mail: [persh@kpi.kharkov.ua](mailto:persh@kpi.kharkov.ua), <https://orcid.org/0000-0001-9092-0078>**Received July 23, 2018; revised August 28, 2018; accepted September 7, 2018*

X-ray diffractometry ( $\lambda \sim 0.154$  nm) was used to study the phase structure, composition and construction of W/Si multilayer X-ray mirrors (MXMs) with tungsten layer thicknesses of  $t_w < 10$  nm obtained by direct-current magnetron sputtering. Two series of samples were fabricated with different tungsten deposition rates, which differ approximately by a factor of 4:  $\sim 0.60$  nm/s and  $\sim 0.15$  nm/s. It is shown that tungsten layers have a polycrystalline (BCC) structure at thicknesses  $t_w > 2.7$  nm, and at  $t_w < 1.9$  nm they are amorphous. Using the  $\sin^2\psi$ -method, it was found that in thin crystalline layers of tungsten ( $t_w < 10$  nm), more than 3 at.% Si can be contained. Tensile stresses in the layers of crystalline tungsten do not exceed 1.1 GPa. The construction of the radial distribution functions of atoms made it possible to establish that amorphous layers of tungsten have an arrangement of atoms close to  $\beta$ -W. In all samples, formation of silicide interlayers is observed at the interfaces, as a result of which the actual thickness of the tungsten layers is less than the nominal one. Amorphous silicide layers, necessarily formed at the stage of MXM manufacturing, contain tungsten disilicide. Depending on the deposition rate, disilicide can have an arrangement of atoms close to either the tetragonal phase,  $t$ -WSi<sub>2</sub> ( $\sim 0.6$  nm/s), or to the hexagonal phase,  $h$ -WSi<sub>2</sub> ( $\sim 0.15$  nm/s). An improved model for the construction of amorphous W/Si MXMs is presented. Mechanisms for the formation of silicide layers are proposed, according to which the bottom silicide interlayers (W-on-Si) are formed mainly by ballistic mixing of tungsten and silicon atoms, and the top ones due to diffusion intermixing. The interdiffusion coefficients were estimated, which made it possible to establish that the effective surface temperature of deposited layers can be at least 250° above the substrate temperature. The ways of reducing the interface interaction are suggested.

**KEY WORDS:** multilayer X-ray mirror, silicide layers, tungsten disilicide, amorphous layers, formation mechanism**СТРУКТУРА І ФАЗОВИЙ СКЛАД БАГАТОШАРОВИХ РЕНТГЕНІВСЬКИХ ЗЕРКАЛ W-Si****Ю.П. Першин, І.Г. Шипкова, О.Ю. Девізенко, В.В. Мамон, В.С. Чумак, В.В. Кондратенко***Національний технічний університет «Харківський політехнічний інститут»**вул. Кирпичова 2, Харків, 61002, Україна*

Методами рентгенівської дифрактометрії ( $\lambda \sim 0,154$  нм) досліджена фазова структура, склад і будова багатошарових рентгенівських дзеркал (БРД) W/Si з товщиною шарів вольфраму  $t_w < 10$  нм, отриманих методом прямогоного магнетронного розпилення. Досліджено дві серії зразків, виготовлених з різними швидкостями осадження вольфраму, які відрізняються приблизно в 4 рази:  $\sim 0,60$  і  $\sim 0,15$  нм/с. Показано, що при товщині  $t_w > 2,7$  нм шари вольфраму мають полікристалічну (ОЦК) структуру, а при  $t_w < 1,9$  нм вони аморфні. За допомогою  $\sin^2\psi$ -методу встановлено, що в тонких кристалічних шарах вольфраму ( $t_w < 10$  нм) може міститися більше 3 ат.% Si. Розтягувальні напруження в шарах кристалічного вольфраму не перевищують 1,1 ГПа. Побудова функцій радіального розподілу атомів дозволила встановити, що аморфні шари вольфраму мають розташування атомів, близьке до  $\beta$ -W. У всіх зразках за рахунок взаємодії на міжфазних межах спостерігається формування силіцидних прошарків, в результаті чого реальна товщина шарів вольфраму менше номінальної. Аморфні силіцидні прошарки, які обов'язково формуються на стадії виготовлення БРД, містять дисиліцид вольфраму. Залежно від швидкості осадження дисиліцид може мати розташування атомів, близьке або до тетрагональної фази,  $t$ -WSi<sub>2</sub> ( $\sim 0,6$  нм/с.), або до гексагональної фази,  $h$ -WSi<sub>2</sub> ( $\sim 0,15$  нм/с.). Представлена уточнена модель будови аморфних БРД W/Si. Запропоновано механізми формування силіцидних прошарків, згідно з якими нижні силіцидні прошарки (W-на-Si) формуються переважно за рахунок балістичного перемішування атомів вольфраму і кремнію, а верхні - внаслідок дифузійного перемішування. Зроблено оцінку коефіцієнтів взаємної дифузії, які дозволили встановити, що ефективна температура поверхні осаджених шарів може бути, щонайменше, на 250° вище температури підкладки. Запропоновано шляхи зниження міжфазної взаємодії.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** багатошарове рентгенівське дзеркало, силіцидні прошарки, дисиліцид вольфраму, аморфні шари, механізм формування**СТРУКТУРА И ФАЗОВЫЙ СОСТАВ МНОГОСЛОЙНЫХ РЕНТГЕНОВСКИХ ЗЕРКАЛ W-Si****Ю.П. Першин, И.Г. Шипкова, А.Ю. Девизенко, В.В. Мамон, В.С. Чумак, В.В. Кондратенко***Национальный технический университет «Харьковский политехнический институт»**ул. Кирпичева 2, Харьков, 61002, Украина*

Методами рентгеновской дифрактометрии ( $\lambda \sim 0,154$  нм) исследована фазовая структура, состав и строение многослойных рентгеновских зеркал (МРЗ) W/Si с толщиной слоев вольфрама  $t_w < 10$  нм, полученных методом прямогоного магнетронного распыления. Исследованы две серии образцов, изготовленных с различными скоростями осаднения вольфрама, которые отличаются примерно в 4 раза:  $\sim 0,60$  и  $\sim 0,15$  нм/с. Показано, что при толщине  $t_w > 2,7$  нм слои вольфрама имеют поликристаллическую (ОЦК) структуру, а при  $t_w < 1,9$  нм они аморфны. При помощи  $\sin^2\psi$ -метода установлено, что в тонких кристаллических слоях вольфрама ( $t_w < 10$  нм) может содержаться более 3 ат.% Si. Растягивающие напряжения в слоях кристаллического вольфрама не превышают 1,1 ГПа. Построение функций радиального распределения

атомов позволило установить, что аморфные слои вольфрама имеют расположение атомов, близкое к  $\beta$ -W. Во всех образцах за счет взаимодействия на межфазных границах наблюдается формирование силицидных прослоек, в результате чего реальная толщина слоев вольфрама меньше номинальной. Аморфные силицидные прослойки, обязательно формирующиеся на стадии изготовления МРЗ, содержат дисилицид вольфрама. В зависимости от скорости осаждения дисилицид может иметь расположение атомов, близкое либо к тетрагональной фазе,  $t$ - $W_2Si_3$  (~0,6 нм/с.), либо к гексагональной фазе,  $h$ - $W_2Si_3$  (~0,15 нм/с.). Представлена уточненная модель строения аморфных МРЗ W/Si. Предложены механизмы формирования силицидных прослоек, согласно которым нижние силицидные прослойки (W-на-Si) формируются преимущественно за счет баллистического перемешивания атомов вольфрама и кремния, а верхние – вследствие диффузионного перемешивания. Сделана оценка коэффициентов взаимной диффузии, которые позволили установить, что эффективная температура поверхности осаждаемых слоев может быть, по меньшей мере, на 250° выше температуры подложки. Предложены пути снижения межфазного взаимодействия.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** многослойное рентгеновское зеркало, силицидные прослойки, дисилицид вольфрама, аморфные слои, механизм формирования

Область мягкого рентгеновского излучения (МРИ) ( $1 < \lambda < 10$  нм) по сравнению с областью видимого и примыкающей к ней ультрафиолетового (УФ) излучения привлекательна своими дополнительными возможностями. Так получение информации о химическом составе твердых тел и поверхностей осуществляется здесь проще, поскольку нет необходимости анализировать десятки линий. Его низкая проникающая способность позволяет получать изображения мало контрастных биологических объектов, в частности в области «водяного» [1] и «углеродного» [2] окна, с минимальным количеством вносимых артефактов, связанных с приготовлением исследуемого образца. Кроме того, достигнутый уровень развития проекционной рентгеновской литографии показывает, что уже в ближайшем будущем начнется постепенный переход промышленных методов получения интегральных электронных схем с УФ на рентгеновскую литографию с минимальным размером элементов менее 10 нм [3].

Многослойные рентгеновские зеркала (МРЗ) являются самыми эффективными рентгено-оптическими элементами в области МРИ для закритических углов по сравнению с массивными зеркалами [4,5], дифракционными решетками [6] и линзами Френеля [7]. Они способны отражать, фокусировать и монохроматизировать МРИ при различных углах вплоть до нормального падения. МРЗ на основе пары материалов W-Si наиболее востребованы для анализа содержания легких элементов (от кислорода до кремния) [8,9], а также переходных металлов 4-го периода Периодической системы элементов, имеющих характеристические спектральные L-линии в области длин волн  $\lambda \approx 1$ -2 нм. Толщины слоев в таких зеркалах составляют 1-3 нм, а число пар слоев превышает 100. Кроме того, они используются в телескопах жесткого рентгеновского излучения с  $\lambda < 0.1$  нм [10]. Их свойства стабильны во времени и при умеренном разогреве ( $T < 250$ -300°С).

Несмотря на их широкое применение, практические коэффициенты отражения для МРЗ W/Si не превышают 50% от теоретических. Основной причиной этого является взаимодействие слоев на стадии изготовления с образованием силицидов, которые существенно снижают оптический контраст на границах раздела слоев. Для дальнейшего повышения эффективности МРЗ W/Si необходимо, по меньшей мере, уменьшить толщину силицидных прослоек. В качестве первого шага в этом направлении необходимо зафиксировать масштабы перемешивания, оценить фазовый и химический состав силицидных прослоек, их толщину. Однако это не является простой задачей, хотя бы потому, что большинство МРЗ W/Si аморфны, а масштабы перемешивания составляют ~1 нм. Последующие шаги могут включать в себя выявление механизмов формирования силицидных прослоек, управление параметрами получаемых прослоек (состав, толщина, плотность), поиск методов, подавляющих силицидообразование и т.д.

Информация об особенностях межфазного взаимодействия слоев вольфрама и кремния, кроме многослойной рентгеновской оптики, востребована при изготовлении СБИС (динамические запоминающие устройства [11], барьерных слоев [12,13], пленочных сопротивлений [14], разводки для микросхем [15,16] и т.д.); однофотонных детекторов [17,18]; пассивирующих покрытий, работающих при повышенной температуре [19]; термоэлементов [20]; для термоядерного синтеза [21], и др. Многослойность облегчает изучение вопросов фазообразования, поскольку позволяет многократно усилить проявление какой-либо особенности (например, степени перемешивания слоев W и Si) и помогает количественно ее оценить.

Ранее мы уже установили [22], что на границах слоев W-Si образуются аморфные силицидные прослойки; оценили плотности отдельных слоев и построили 4-х слойную модель роста МРЗ W/Si.

Цель данной работы – оценить фазовый состав силицидных прослоек и структуру слоев W, а также их химический состав. Здесь также будут рассмотрены возможные механизмы формирования силицидных прослоек и способы уменьшения их толщины.

#### МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Многослойные зеркала W/Si изготавливались методом магнетронного распыления на постоянном токе в среде аргона при давлении ~0,3 Па. В качестве мишеней использовались диски вольфрама (99,5%) и кремния (99,99%) диаметром 100 мм, расположенные симметрично относительно оси вращения карусели. Подложка,

закрепленная на карусели, последовательно экспонировалась над мишенями в фиксированном положении над их центрами. Скорость осаждения компонентов зависела от режимов работы магнетронов. В работе изготавливалось две серии образцов со скоростями осаждения: 1)  $\sim 0,6$  нм/с (прикладываемая мощность на вольфрамовом магнетроне  $P_W \sim 35$  Вт) и  $\sim 1,21$  нм/с (мощность на кремниевом магнетроне  $P_{Si} \sim 150$  Вт); 2)  $\sim 0,15$  нм/с ( $P_W \sim 9$  Вт) и  $\sim 0,42$  нм/с ( $P_{Si} \sim 50$  Вт). В качестве подложек использовались сверхгладкое стекло и полированный кремний со среднеквадратичной шероховатостью поверхности 0,3-0,5 нм.

Толщины однослойных покрытий и периоды многослойных зеркал измерялись методом малоугловой рентгеновской рефлектометрии ( $2\theta < 15^\circ$ ) на дифрактометре ДРОН-3М в излучении  $CuK\alpha_1$  ( $\lambda = 0,154$  нм) с первичным кристаллом-монокроматором (110)Si и последующим моделированием экспериментальных спектров в программе, рассчитывающей коэффициенты отражения по формулам Френеля.

Для изучения фазового состава MP3 W/Si, мы сделали рентгеновские съемки образцов на больших углах ( $2\theta = 15-130^\circ$ ) в излучении  $CuK\alpha$  ( $\lambda = 0,1542$  нм). При этом осуществлялось как  $\theta-2\theta$ , так и  $2\theta$ -сканирование детектором в скользящей геометрии съемки при фиксированном угле падения  $\alpha = 2,1^\circ$  (для образцов 1-й серии) и  $\alpha = 1,4^\circ$  (для 2-й серии) с графитовым кристаллом-монокроматором перед детектором.

Для исследования структуры аморфных зеркал применялся метод построения функций радиального распределения атомов (ФРРА). В аморфных материалах этот метод позволяет определять радиусы координационных сфер и координационное число в первой сфере [23]. Рентгеновские съемки проводились на дифрактометре ДРОН-3М в излучении  $CuK\alpha$  в скользящей геометрии ( $\theta = 1,4^\circ$ ) с графитовым кристаллом-монокроматором перед детектором. При построении интерференционной функции вводились следующие поправки: дисперсионные поправки к атомным факторам рассеяния, поправки на поляризацию, на поглощение, на комптоновское (некогерентное) рассеяние, а также проводилась нормировка кривой интенсивности. Наличие нескольких компонент в исследуемом образце отражено при вычислении усредненных значений атомных факторов, поправок на поглощение, средней атомной плотности с учетом их атомной концентрации. С помощью Фурье-преобразования интерференционной функции была рассчитана ФРРА. Координационное число в первой координационной сфере определяли как площадь под линией ФРРА вблизи первого пика, ограниченной соседними минимумами. Для устранения ложных пиков ФРРА, вызванных обрывом кривой интенсивности, применялось умножение интерференционной функции на экспоненциальную модифицирующую функцию.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Мы изготовили 2 серии многослойных рентгеновских зеркал (MP3) W/Si, включающие в себя более 20 образцов. В 1-й серии скорости осаждения вольфрама составляли  $\sim 0,6$  нм/с. (для кремния  $\sim 1,21$  нм/с.). Здесь мы следили за процессом перехода слоев W из кристаллического состояния в аморфное, а также за особенностями формирования межфазных границ в тонких слоях вольфрама ( $t_W < 0,75$  нм).

Во 2-й серии скорость осаждения вольфрама были почти в 5 раза ниже (0,148 нм/с.), чем в 1-й серии. Здесь мы последовательно изменяли толщину W от  $\sim 0,34$  до  $\sim 1,7$  нм с шагом  $\sim 0,1$  нм, сохраняя постоянным номинальное отношение толщины слоев ( $t_W/t_{Si} \sim 0,35$ ) в периоде для всех образцов, и отслеживали изменение фазового состава MP3. Во 2-й серии мы имели дело только с аморфными слоистыми системами.

### Фазовый состав MP3 W/Si первой серии

На рис. 1 представлены дифрактограммы для MP3 со слоями вольфрама в диапазоне от  $\sim 9,8$  до  $\sim 0,5$  нм. Для относительно толстых слоев вольфрама ( $2,7 < t_W < 9,8$  нм) характерна поликристаллическая ОЦК структура (с-W) с размером зерен, оцененным по методу Шеррера, немного меньше номинальной толщины вольфрама ( $\sim 2,3$  и  $\sim 9,4$  нм для крайних значений толщины слоев). Это связано с тем, что часть вольфрама ( $t_W \sim 0,4$  нм) взаимодействует с кремнием на этапе изготовления MP3, формируя силицидные прослойки. Угловое положение пика (110)W находится на углах  $2\theta \sim 40,6^\circ$ , что немного больше табличного значения  $40,264^\circ$  [24]; это может указывать на то, что слои вольфрама напряжены, либо в них присутствуют (растворены) примесные атомы.

Уменьшение толщины вольфрама до  $\sim 1,3$  нм приводит к аморфизации слоя вольфрама. При этом сохраняется всего три пика, самый интенсивный из которых только немного смещается от исходного положения (110)W в сторону меньших углов ( $2\theta: 40,6^\circ \rightarrow 40,5^\circ$ ), однако уширяется в несколько раз ( $2,4^\circ \rightarrow 8,4^\circ$ ) (рис. 1с, рис. 2). Остальные два пика уже не расположены в позициях дифракционных пиков поликристаллического вольфрама и находятся в положениях, для которых  $\theta_2/\theta_1 \sim 1,7$  и  $\theta_3/\theta_1 \sim 2,1$  (что соответствует аморфному состоянию для модели твердых сфер).

Дальнейшее уменьшение толщин вольфрама до  $\sim 0,75$  нм и менее помимо уширения приводит к значительному смещению самого сильного пика, по меньшей мере, на  $\sim 2,8^\circ$  ( $2\theta: 40,5^\circ \rightarrow 43,3^\circ$ ). Самые интенсивные пики для кристаллического силицида, согласно справочным данным, находятся на углах  $2\theta \sim 44,6^\circ$  (для тетрагональной структуры) и  $2\theta \sim 42,6^\circ$  (для гексагональной структуры). Очевидно, что аморфное вещество имеет меньшую плотность, т.е. межатомное расстояние должно быть увеличено по сравнению кристаллическим. Другими словами, пик от аморфного вещества должен наблюдаться на меньших углах по

отношению к кристаллическому. Поэтому вероятнее всего вольфрам толщиной  $t_w \leq 0,75$  нм находится в связанном состоянии в виде дисилицида и имеет расположение атомов, близкое к тетрагональному.

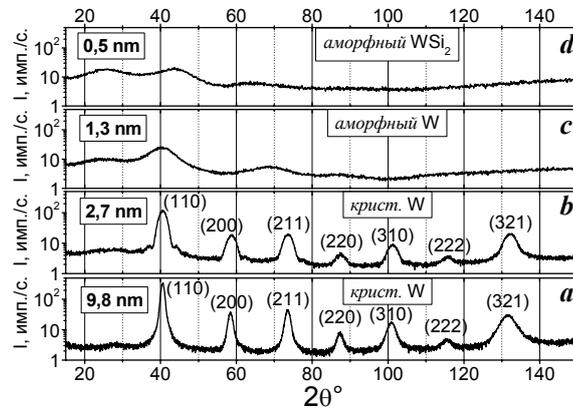


Рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы многослойных образцов W/Si ( $\lambda=0,154$  нм) номинальные толщины слоев вольфрама 9,8 (а); 2,7 (b); 1,3 (с); и 0,5 (d) нм.

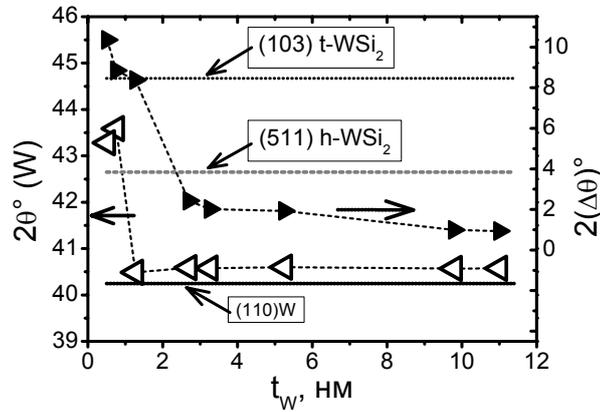


Рис. 2. Зависимость углового положения наиболее интенсивного пика (светлые треугольники) и его ширины (темные треугольники) на фазовых дифрактограммах для МРЗ W/Si, приведенных на рис. 1, от толщины слоев вольфрама.

Мы использовали  $\sin^2\Psi$ -метод для оценки напряжений в слоях вольфрама, которые находятся в кристаллическом состоянии ( $t_w \geq 2,7$  нм). Поскольку фазовые дифрактограммы записывались в скользящей геометрии, в последующих расчетах мы использовали все дифракционные пики. Для начала мы построили зависимость измеренного параметра решетки от  $\sin^2\Psi$ , и затем определили параметр решетки,  $a_0$ , вольфрама в ненапряженном состоянии {при  $\sin^2\Psi = 2\nu/(1+\nu) \approx 0,45$ ;  $\nu = 0,29$ , коэффициент Пуассона}. На зависимости  $a_0 = f(t_w)$ , приведенной на рис. 3, видно, что период решетки меньше (на 0,2-0,4%) табличной величины (пунктирная линия в верхней части рисунка), и разница по мере увеличения толщины слоев вольфрама уменьшается. Более низкие значения  $a_0$  могут быть связаны с наличием таких примесей, как С, N, O, Si, поскольку ковалентные радиусы этих атомов, меньше, чем у W. Однако наблюдаемый переход из аморфного состояния в кристаллическое, которое наблюдается между 1,7 нм и 2,7 нм в каждом слое вольфрама многослойного зеркала, указывает на преимущественное влияние кремния, ослабевающее с ростом толщины слоя вольфрама. Если бы преобладающим было влияние углерода, кислорода либо азота, тогда мы не должны были наблюдать переход слоев вольфрама в кристаллическое состояние, поскольку условия их осаждения не менялись, и указанные примесные атомы оказывали бы аморфизирующее влияние и при  $t_w \sim 10$  нм. Подобный переход из аморфного состояния в кристаллическое для слоев молибдена под воздействием кремния наблюдали в многослойной системе Mo/Si при  $2 < t_{Mo} < 2,6$  нм [25-27], где указывалось, что слои Mo кристаллизуются, когда концентрации кремния в слоях Mo становится ниже предела равновесной растворимости.

Полагая, что уменьшение периода решетки в слоях вольфрама вызвано только примесными атомами кремния, мы на основании правила Вегара оценили количество растворенного кремния. Для этого мы использовали данные исследований для молибдена [28], полагая, что свойства молибдена и вольфрама, как представителей одной подгруппы периодической системы элементов, близки. Полученные данные представлены на вставке к рис. 3. Здесь можно видеть, что для тонких кристаллических слоев вольфрама ( $t_w \sim 2,7$  нм) количество растворенного кремния превышает 6 ат.%. Согласно равновесной фазовой диаграмме

W-Si [29] максимальное количество кремния, которое может раствориться в вольфраме при  $\sim 2360\text{K}$ , составляет  $\sim 5,5$  ат.%. С одной стороны, это может указывать на присутствие в слоях вольфрама других примесей. С другой стороны, более низкие плотности, характерные для материалов в тонкопленочном состоянии [30], в том числе и для вольфрама [22], свидетельствуют о наличии в слоях свободного объема и возможном отклонении предельных значений растворимости от равновесной.

По параметру решетки вольфрама в ненапряженном состоянии ( $a_0$ ) и в плоскости пленки ( $a_{||}$ ) мы определили величину деформации и ее знак, а затем, используя коэффициент Пуассона и модуль Юнга ( $E=350$  ГПа), - напряжения в слоях вольфрама. Напряжения имеют растягивающий характер (со знаком «+») и находятся в пределах 0,6-1,1 ГПа; относительная погрешность определения напряжений составила  $\pm 11\%$ . Эта величина и знак согласуются с уровнем напряжений в МРЗ Mo/Si [31].

Таким образом, для первой серии характерно два состояния слоев вольфрама в МРЗ W/Si: кристаллическое ( $t_w \geq 2,7$  нм) и аморфное ( $t_w \leq 1,3$  нм). Кристаллические слои могут содержать до  $\sim 6$  ат.% кремния, и в них присутствуют растягивающие напряжения в плоскости пленки. Аморфные слои вольфрама толщиной  $t_w \leq 0,75$  нм находятся в связанном с кремнием состоянии с расположением атомов, близким к тетрагональному дисилициду  $\text{WSi}_2$ .

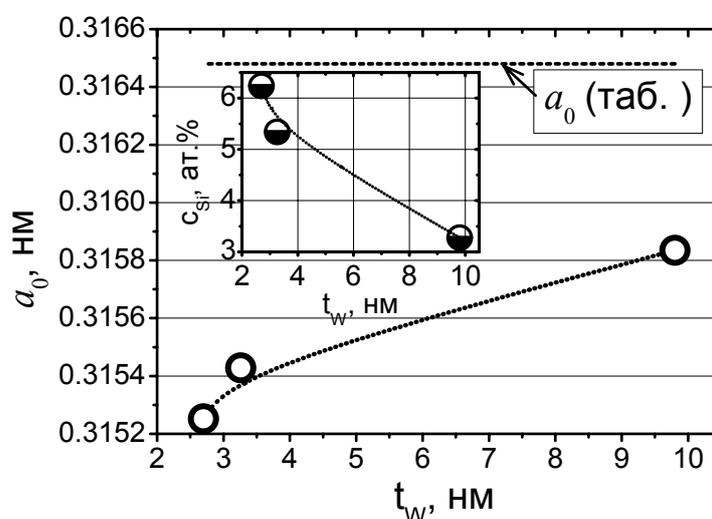


Рис. 3. Параметр решетки  $a_0$  в слоях вольфрама в ненапряженном состоянии в зависимости от толщины слоев кристаллического вольфрама,  $t_w$ . На вставке показана рассчитанная концентрация атомов кремния в решетке вольфрама.

#### Фазовый состав МРЗ W/Si второй серии

Толщины слоев вольфрама во 2-й серии находились в пределах от  $\sim 0,4$  до  $\sim 1,9$  нм. Примеры двух дифрактограмм с предельными толщинами вольфрама (периоды МРЗ  $d \sim 1$  и  $d \sim 6,2$  нм, соответственно) представлены на рис. 4. На них наблюдается всего 3 пика: 1) в районе  $26\text{-}29^\circ$ , т.е. вблизи интенсивной линии (111)Si; 2) в районе  $40\text{-}42^\circ$ , вблизи самой интенсивной линии (110)W; это самый интенсивный пик на всех дифрактограммах; и 3) в районе  $66\text{-}69^\circ$ , где можно ожидать рефлексы как от кремния, так и от вольфрама и его силицидов. Такое резкое уменьшение количества дифракционных пиков по сравнению с дифрактограммами для кристаллических слоев на рис. 1a,b, уменьшение их интенсивности (в 2-7 раз), а также их значительное уширение ( $2\Delta\theta > 5^\circ$ ) как для образцов на рис. 1c,d, указывают на то, что все слои находятся в аморфном состоянии. Здесь также видно, что вторые пики вблизи  $40\text{-}42^\circ$  для обоих образцов не совпадают и смещены друг относительно друга, по меньшей мере, на  $1,7^\circ$ .

Интенсивность 1-го пика ( $26^\circ\text{-}29^\circ$ ) существенно подрастает для малопериодного образца по отношению к соответствующему 2-му пику. Поскольку амплитуда рассеивания рентгеновского излучения атомами вольфрама примерно в 5 раз выше, чем рассеивание атомами кремния, то даже с учетом реального соотношения толщин слоев в МРЗ, у нас должно получаться, по меньшей мере, девятикратное превышение интенсивности линии вольфрама ( $2\theta \sim 41^\circ$ ) над кремнием ( $2\theta \sim 28^\circ$ ). Однако для малопериодного образца фактически наблюдается различие только на 20%. Кроме того, подрастает также интенсивность 3-го пика для МРЗ с периодом  $d \sim 1$  нм. Все это указывает на то, что фазовый состав МРЗ меняется с изменением периода; и, по меньшей мере, 1-й и 3-й пики не относятся к аморфному кремнию. Рассеивающая способность рентгеновского излучения молекулой  $\text{WSi}_2$  примерно в 3,4 раза выше, чем у атомов кремния, не говоря уже о других силицидах; и поскольку образцы аморфны, такая небольшая разница в интенсивностях двух соседних пиков для образца с периодом  $\sim 1$  нм, указывает на то, что 1-й пик может принадлежать не к аморфному кремнию, а к одному из силицидов, например  $\text{WSi}_2$ , который имеет три интенсивных линии в этой области углов ( $22,8^\circ$ ;  $26,8^\circ$  и  $28,0^\circ$ ) [32].

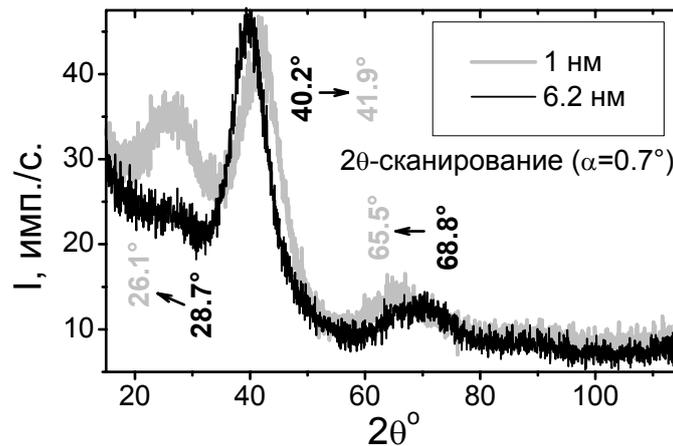


Рис. 4. Фазовые дифрактограммы для MP3 W/Si с толщиной вольфрамового слоя  $t_W \sim 0,4$  нм (серая линия) и  $t_W \sim 1,9$  нм (черная линия), полученные в скользящей геометрии (угол падения  $\alpha = 1,4^\circ$ ). Цифрами указаны угловые положения пиков, демонстрирующие их смещение друг относительно друга.

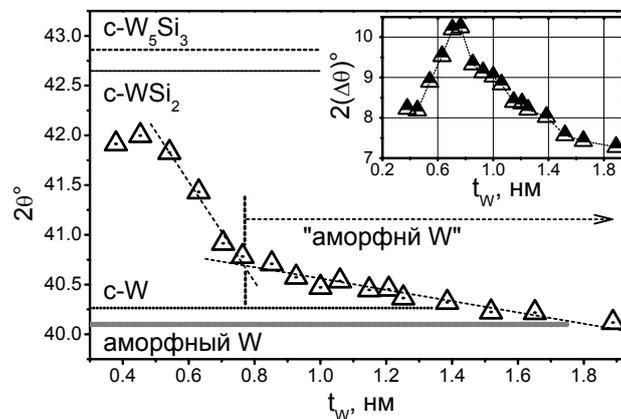


Рис. 5. Зависимость углового положения наиболее интенсивных пиков ( $2\theta \sim 41^\circ$ ) от номинальной толщины слоев вольфрама. Горизонтальными линиями показаны аналогичные табличные значения для различных кристаллических веществ. На вставке приведена зависимость ширины пиков ( $2\theta \sim 41^\circ$ ) на середине высоты от толщины слоев вольфрама.

Угловые положения наиболее интенсивных дифракционных пиков для остальных многослойных образцов ( $0,4 < t_W < 1,9$  нм) лежат в промежутке между пиками, приведенными на рис. 4, и показаны на рис. 5 в виде треугольников. На этот же рисунок горизонтальными пунктирными линиями добавлены угловые положения наиболее интенсивных линий для различных кристаллических фаз, образование которых возможно в многослойной системе W/Si, а именно:  $(110)W$  (ОЦК),  $(411)W_5Si_3$  (тетраг.) и  $(511)WSi_2$  (гексаг.). Наблюдаемую на рис. 5 зависимость можно условно разбить на 3 участка: 1)  $t_W < 0,54$  нм, где угловое положение 2-го пика меняется мало; 2)  $0,54 < t_W < 0,76$  нм – область динамического изменения положения 2-го пика; 3)  $t_W > 0,76$  нм – область монотонного уменьшения углов.

Обращает на себя внимание, что смещение вторых пиков для образцов с тонким вольфрамом существенно разнятся в 1-й и 2-й сериях образцов: в 1-й серии они наиболее близки к 100%-линии тетрагонального  $WSi_2$  (рис. 2), а во 2-й – к гексагональной фазе  $WSi_2$ . Мы полагаем, что в обоих случаях сначала образуется гексагональный силицид (фаза, существующая при высоких температурах), поскольку энергии распыляемых атомов, если не учитывать отвод тепла, достаточно большие, чтобы расплавить поверхность подложки. Другими словами, при распылении возможна «закалка» высокотемпературной фазы. При более высокой скорости осаждения дополнительная энергия может приводить к «отжигу» осаждаемого слоя и, соответственно, к смене фазы.

Зависимости на 2-м и 3-м участках (рис. 5) мы аппроксимировали прямыми, которые пересекаются при  $t_W \sim 0,77$  нм. Мы полагаем, что при этой толщине в MP3 W/Si может проявляться «чистый» вольфрам, поскольку угловое положение этого пика смещается в сторону вольфрама с ростом толщины вольфрамового слоя. Поэтому в диапазоне толщин вольфрама  $0,54-0,76$  нм (2-й участок на рис. 5) в MP3 маловероятно появление другого силицида (например,  $W_5Si_3$ ). На 3-м участке наблюдаются экспериментальные точки, которые находятся ниже углового положения 100%-линии  $(110)W$  для кристаллического вольфрама, т.е. аморфный вольфрам имеет плотность ниже табличной. Фактически «чистый» вольфрам в процессе осаждения должен

появляться уже при  $t_w > 0,54$  нм (т.е. начало сдвига пика на рис. 5), однако частично он взаимодействует с осаждаемым на него кремнием и принимает участие в формировании верхней (Si-на-W) силицидной прослойки. При  $t_w > 0,77$  нм влияние появившегося аморфного вольфрама на формирование дифракционной картины становится преобладающим.

Силицидный слой должен присутствовать во всех образцах, поскольку невозможно избежать начальной стадии перемешивания вольфрама и аморфного кремния при осаждении тонких слоев W. Поэтому начиная со 2-го участка ( $t_w > 0,54$  нм), наблюдаемые на рис. 5 пики являются суммой, по меньшей мере, двух пиков: силицидного и вольфрамового. Это видно на зависимости ширины ( $2\Delta\theta$ ) 2-го пика от толщины  $t_w$ , которая имеет явный максимум (вставка на рис. 5): до  $t_w \sim 0,7$  нм она растет от  $\sim 8,3^\circ$  до  $\sim 10,3^\circ$ , а затем после  $t_w \sim 0,76$  нм падает до  $\sim 7,3^\circ$ . Рост ширины 2-го пика означает, что с увеличением толщины слоя вольфрама меняется состав W-содержащего слоя, т.е. наряду с силицидным пиком появляется и начинает расти пик от аморфного вольфрама. Уменьшение ширины пика после 0,76 нм означает, что влияние пика от аморфных слоев W становится преобладающим за счет превышения его удельного объема над объемом  $WSi_2$ , а также (с его меньшей физической шириной) монофазностью этого слоя.

Поскольку мы пришли к выводу о многофазности вольфрам-содержащих слоев после анализа дифрактограмм от 17 многослойных образцов, мы решили убедиться в многофазности «толстых» слоев вольфрама, анализируя дифрактограмму только от одного образца. Для этого мы выбрали образец с самой большой толщиной вольфрама ( $t_w \sim 1,9$  нм). Чтобы «прощупать» состав слоев вольфрама мы при помощи стоячей волны создали условия, при которых интенсивность рентгеновских лучей перераспределяется в пределах каждого слоя вольфрама. Для этого мы последовательно меняли угол падения в пределах 1-го малоуглового пика ( $\theta \sim 0,8^\circ$ ) от  $0,5^\circ$  до  $1,2^\circ$  и осуществляли  $2\theta$ -сканирование в диапазоне углов  $20-60^\circ$  ( $2\theta$ ), чтобы проследить динамику изменения углового положения 2-го пика ( $2\theta \sim 41^\circ$ ). Результаты съемок показаны на рис. 6. Мы видим, что угловое положение наиболее интенсивного пика (вертикальные палочки) на фазовой дифрактограмме меняется: сначала постепенно уменьшается при подходе к малоугловому пику (серая линия) от  $40,1^\circ$  до почти  $39,8^\circ$ , а затем при переходе через малоугловую пик растет более чем на  $0,7^\circ$  ( $39,8^\circ \rightarrow 40,6^\circ$ ), и снова падает до  $\sim 40,2^\circ$  за пределами малоуглового пика. Если учесть, что при такой геометрии съемки интенсивность внутри слоев вольфрама только перераспределяется (а не исключается), и при этом все подслои вольфрам-содержащего слоя участвуют в формировании дифракционной картины, то такие изменения углового положения 2-го пика выглядят довольно большими. Мы также провели статистическую обработку дифрактограмм для 4-х МРЗ с одинаковыми параметрами и режимами нанесения (толщина слоев вольфрама, число периодов, величина периода; токи на магнетронах, геометрия нанесения и т.д.), которые были сделаны в разных экспериментах, и получили разброс углового положения 2-го пика менее  $\pm 0,05^\circ$ . Мы полагаем, что эти результаты являются прямым доказательством существования в толстых слоях вольфрама ( $t_w > 0,8$  нм), по меньшей мере, двух фаз: дисилицида вольфрама и «чистого» аморфного вольфрама.

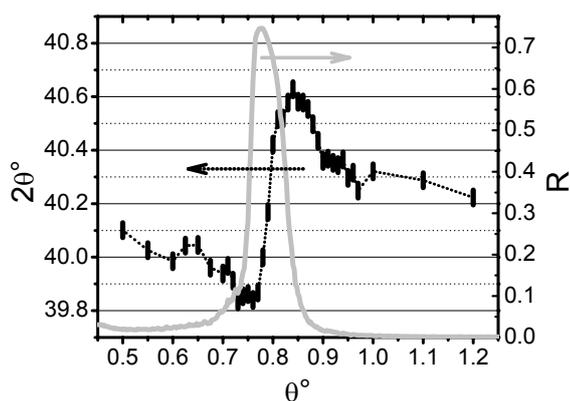


Рис. 6. Изменение углового положения 2-го пика на фазовой дифрактограмме (рис. 5) для МРЗ W/Si с  $t_w \sim 1,9$  нм при изменении угла падения вблизи 1-го малоуглового пика ( $\theta \sim 0,8^\circ$ ) от МРЗ (см. текст).

#### Функция радиального распределения атомов (ФРРА) вольфрама

Для того, чтобы качественно описать структуру аморфных слоев вольфрама, мы рассчитали функции радиального распределения атомов для аморфных образцов 2-й серии на основе дифрактограмм в жесткой рентгеновской области. Из зависимости ФРРА мы брали радиус первой координационной сферы ( $r_1$ ) и координационное число ( $N$ ). Поскольку у вольфрама и его силицидов межатомные расстояния близки, мы не обнаружили какой-либо закономерности на зависимости  $r_1 = f(t_w)$ . Однако, как видно на рис. 6, при изменении толщины вольфрама от  $\sim 0,4$  до  $\sim 1,9$  нм координационные числа монотонно меняются почти в два раза: от  $\sim 5$  до  $\sim 9$ .

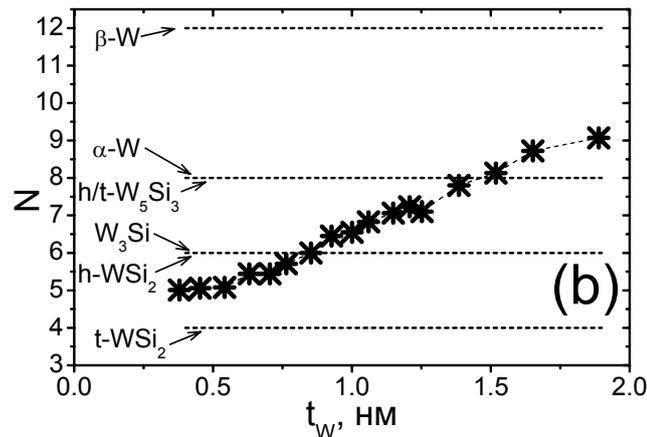


Рис. 7. Зависимость координационного числа  $N$ , от номинальной толщины слоев вольфрама в МРЗ W/Si.

На основе литературных данных о кристаллической структуре различных соединений W и Si, а также различных модификаций вольфрама мы собрали данные о координационных числах этих веществ (таблица 1) и сравнили их с экспериментальными данными на рис. 6. Табличные координационные числа имеют величины 4, 6, 8 и 12. Для первых трех образцов  $N \sim 5$ , что должно соответствовать силициду  $WSi_2$ . Поскольку в аморфном веществе атомы упакованы менее плотно, по сравнению с кристаллическим, т.е. должны иметь меньшее  $N$ , то из данных на рис. 6 можно сделать вывод, что тонкие слои вольфрама в процессе осаждения взаимодействуют с кремнием и образуют гексагональный дисилицид вольфрама.

Таблица 1.

Координационные числа ( $N$ ) и структурный тип веществ

№	Вещество	$N$	Структурный тип	Ист.
1	$\alpha$ -W	8	A2	[33]
2	$\beta$ -W	12	A15	[34]
3	$W_3Si$	6	A15	[34]
4	$h$ - $W_5Si_3$	8	$D8_8$	[35]
5	$t$ - $W_5Si_3$	8	$D8_m$	[36]
6	$h$ - $WSi_2$	6	C40	[35]
7	$t$ - $WSi_2$	4	$C11_b$	[36]

Образцы с номинальными толщинами вольфрама  $t_W > 1,6$  нм имеют  $N \sim 9$ , что выше значений  $N$  для  $\alpha$ -W, но ниже, чем для  $\beta$ -W. Можно предположить, что такие относительно толстые слои вольфрама могут иметь частично структуру  $\alpha$ -W и частично  $\beta$ -W. Однако, поскольку во всех образцах, как было показано выше, присутствуют силицидные прослойки, которые начинают образовываться с самого начала осаждения вольфрама и которые могут понижать значение  $N$ , то следует ожидать, что реальная величина  $N$  у толстых слоев выше и они могут иметь преимущественно структуру  $\beta$ -W.

Для того чтобы убедиться в этом, мы проделали следующие манипуляции. Ранее [22] было показано, что слои W толщиной  $t_W > 1,3$  нм состоят из трех подслоев: 1) при  $t_W < 0,7$  нм растет  $WSi_2$ ; 2) при  $0,7 < t_W < 1,3$  нм растет силицидная смесь со средним составом  $WSi_{0,6}$ ; 3) при  $t_W > 1,3$  нм растет собственно вольфрам. Чтобы получить  $N$  только для вольфрамовых слоев, мы сначала привели рентгеновские дифрактограммы к одному периоду, поделив их интенсивность на число периодов. Затем мы последовательно вычитали дифрактограммы для тонких слоев вольфрама от дифрактограмм для более толстых слоев, которые находятся на границах указанных областей. Так из дифрактограммы для самого толстого вольфрама ( $t_W \sim 1,9$  нм) мы вычли дифрактограмму с  $t_W \sim 1,3$  нм, чтобы убрать силицидную часть и оставить информацию о структуре только слоев вольфрама. Точно также, чтобы оценить структуру второй силицидной прослойки (номинальным составом  $WSi_{0,6}$ ), мы из дифрактограммы с  $t_W \sim 1,3$  нм вычли дифрактограмму с  $t_W \sim 0,7$  нм. Дифрактограмма для аморфных прослоек «чистого» вольфрама толщиной  $t_W > 1,3$  нм приведена на рис. 8. По форме она схожа с другими дифрактограммами от аморфных МРЗ W/Si, подобно дифрактограммам на рис. 1с,d. Единственное отличие состоит в том, что здесь немного уменьшилось угловое положение самого интенсивного пика по отношению к многослойному образцу с  $t_W \sim 1,9$  нм ( $40,26^\circ \rightarrow 40,1^\circ$ ), и его ширина сузилась на  $\sim 40\%$  ( $7,3^\circ \rightarrow 4,4^\circ$ ) за счет удаления из дифрактограммы силицидной части. Угловое положение для пика от «чистого» аморфного вольфрама мы также нанесли на рис. 5 в виде серой горизонтальной линии.

По спектру, приведенному на рис. 8, мы рассчитали функцию радиального распределения атомов для аморфных прослоек вольфрама и определили радиус первой координационной сферы и число атомов в них. Увеличенный первый пик ФРРА приведен на рис. 9 вместе с данными для двух модификаций кристаллического вольфрама. Радиус 1-й координационной сферы для аморфных прослоек вольфрама составил  $\sim 0,291$  нм, а координационное число  $\sim 12,2$ . Сравнение с известными структурными модификациями вольфрама отдает предпочтение  $\beta$ -W в особенности по параметру N.

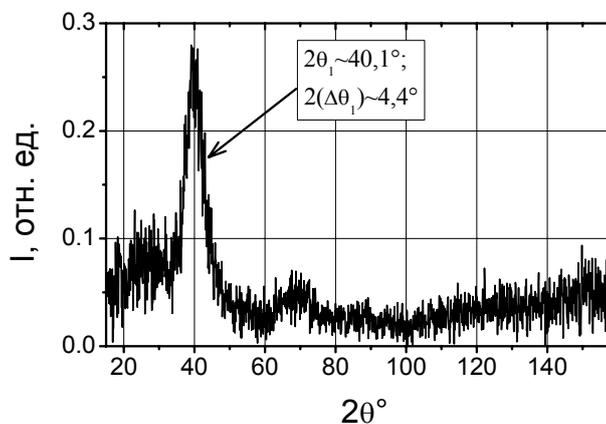


Рис. 8. Рентгеновский спектр для аморфных прослоек вольфрама с  $t_w > 1,3$  нм в МРЗ W/Si (см. текст).

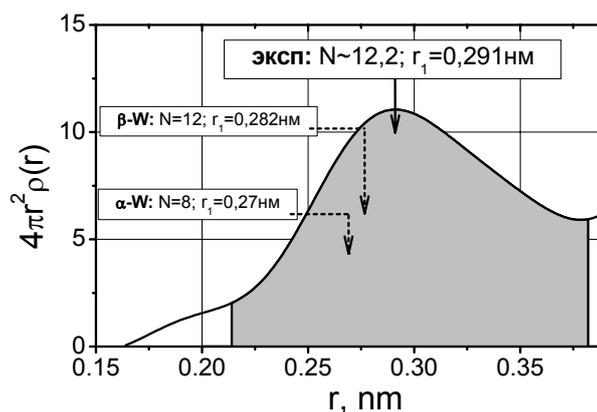


Рис. 9. Изображение 1-го пика функции радиального распределения атомов для аморфных прослоек вольфрама.

Для второй силицидной прослойки мы получили  $r_1 \sim 0,287$  нм и  $N \sim 10,4$ . Если в качестве основного параметра сравнения брать N, то с одной стороны он лежит между  $\beta$ -W и  $\alpha$ -W, а с другой – между  $\beta$ -W и  $t$ -W<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>. Если опираться также на параметр  $r_1$ , то в качестве второго вещества может выступить и h-WSi<sub>2</sub>. Последний вариант нам кажется более правдоподобным также и потому, что угловое положение наиболее интенсивного пика на рис. 5 для  $t_w > 0,54$  нм только уменьшается с ростом толщины вольфрама, а должен расти, если учесть, что наиболее интенсивная линия от кристаллического силицида W<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> находится при больших углах ( $42,9^\circ$ ) по отношению к WSi<sub>2</sub> ( $42,6^\circ$ ). Поэтому второй силицидный слой может состоять из смеси  $\beta$ -W и h-WSi<sub>2</sub>, при этом имея состав, близкий к WSi<sub>0,6</sub> [22].

Энтальпии образования для силицидов вольфрама имеют значения  $82 \pm 6$  кДж/моль (WSi<sub>2</sub>) и  $133 \pm 25$  кДж/моль (W<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>) [37]. Метод Преториуса [38], который на основе энтальпий образования позволяет предсказать фазу, образующуюся в системе W-Si, отдает предпочтение дисилициду вольфрама во всем диапазоне концентраций кремния. Таким образом, можно прийти к заключению, что на обеих межфазных границах многослойной системы W-Si должен присутствовать WSi<sub>2</sub>.

По результатам исследований, проведенных в данном подразделе, можно построить уточненную модель роста МРЗ W/Si с толщинами  $t_w > 1,3$  нм. Мы воспользовались результатами предыдущей работы в отношении толщин силицидных прослоек [22], согласно которым толщина нижней (граница W-на-Si) силицидной прослойки составляет  $\sim 1,8$  нм. Хотя она находится в аморфном состоянии, ее структура в ближнем порядке схожа с h-WSi<sub>2</sub>. Верхняя силицидная прослойка (граница Si-на-W) толщиной  $\sim 0,9$  нм состоит из дисилицида h-WSi<sub>2</sub> только на  $\sim 40\%$  [22]; остальное –  $\beta$ -W. Собственно аморфный вольфрам, которому, как было показано выше, не дает кристаллизоваться кремний, имеет структуру, близкую к  $\beta$ -W. Схематическое изображение этой модели представлено на рис. 10.

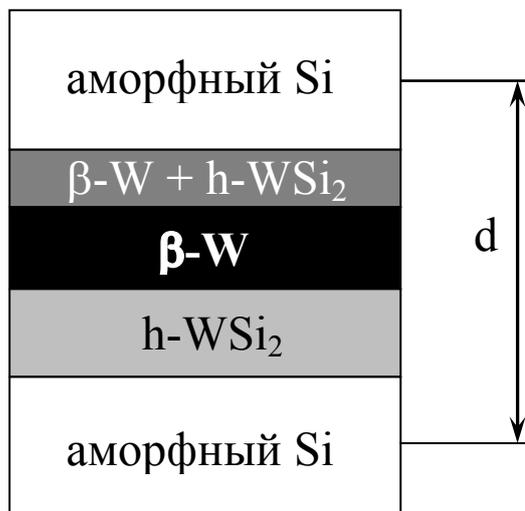


Рис. 10. Уточненная модель роста МРЗ W/Si с толщинами слоев вольфрама  $t_w > 1,3$  нм.

### Механизм роста силицидных прослоек

Поскольку мы уже установили, что на границах слоев формируются силицидные прослойки, их состав и толщину, то на основе этих данных можно оценить наиболее вероятный механизм их формирования. Для МРЗ, полученных методом распыления, можно ожидать следующие механизмы формирования силицидов: 1) баллистический, за счет механического внедрения осаждаемых атомов в уже осажденный слой на подложке; 2) диффузионный, за счет разогрева поверхности подложки осаждаемыми атомами и последующей их диффузии и 3) комбинированный, состоящий из первых двух. Для начала на основе рабочих напряжений на магнетронах при помощи программы TRIM [39] мы посчитали энергии распыленных атомов. Рассчитанные данные приведены в таблице 2.

Для потенциала  $U_w \sim 550$  В на мишени вольфрама энергия распыленных атомов вольфрама в среднем составляет  $\sim 32,5$  эВ; при этом около 26% атомов аргона с энергией  $\sim 126$  эВ отражаются от мишени, из которых менее 15% попадают на подложку. Глубина проникновения атомов вольфрама в слой кремния при нормальном падении составляет  $\sim 1,7$  нм. Эта величина соответствует толщине дисилицидного слоя ( $t_{WSi_2} \sim 1,8$  нм) на нижней силицидной границе (W-на-Si). Однако в нашей геометрии распыленные атомы осаждаются на подложку при углах, близких к  $45^\circ$  ( $\pm 15^\circ$ ), что снижает глубину проникновения до  $\sim 1,2$  нм. Если учесть, что в процессе осаждения образуется дисилицид, то толщина проникновения может понизиться до  $\sim 0,7$  нм. Другими словами, величина 1,2 нм – это максимальная глубина проникновения распыленных атомов вольфрама в слой кремния, которую можно ожидать только для начальной стадии осаждения вольфрама. Таким образом, формирование самое большее 2/3 силицидного слоя на нижней границе можно объяснить баллистическим перемешиванием.

Энергия, которую осаждаемые атомы вольфрама могут передать поверхностным атомам слоя кремния, включает в себя удельную теплоту конденсации ( $E_c \sim 8,5$  эВ/атом), среднюю кинетическую энергию прибывающих атомов ( $E_k \sim 32,5$  эВ/атом) и теплоту, которая выделяется в результате образования  $WSi_2$  ( $\Delta H_{298} \sim 0,85$  эВ/атом). Кроме того, небольшое количество энергии приходит на подложку с отраженными от вольфрамовой мишени атомами аргона ( $E_{Ar} \sim 4$  эВ/атом). В результате мы получаем общую энергию  $E(W) = E_c + E_k + \Delta H_{298} + E_{Ar} \approx 46$  эВ/атом, которая может выделиться на нижней границе (W-на-Si). Этой энергии достаточно, чтобы расплавить слой кремния, на который осаждаются атомы вольфрама, однако, учитывая, что она выделяется не мгновенно, а в течение продолжительного времени (секунды), плотность энергии может значительно понизиться за счет отвода тепла в подложку.

Зная скорость осаждения и время напыления слоев вольфрама, которые обеспечивают формирование нижней силицидной прослойки, мы можем оценить коэффициент диффузии атомов вольфрама в слой кремния [40]:  $D_w = (0,6 \times 10^{-7} \text{ см})^2 / 4,767 \text{ с} \approx 7,6 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{с}$ . Здесь мы учли, что  $\sim 1,2$  нм в нижней силицидной прослойке может образовываться по баллистическому механизму, а  $1,8-1,2 \approx 0,6$  нм – по диффузионному. Уравнение Аррениуса для коэффициента диффузии в пленочной системе вольфрам-кремний, как показано в [41], имеет вид  $D = 5,59 \times 10^{-5} \exp(-1,35 \text{ эВ}/kT)$ . Подставляя полученный коэффициент диффузии  $D_w$  в это уравнение, мы получаем, что эффективная температура в нижней силицидной прослойке составляет  $\sim 626$  К ( $kT \sim 0,05$  эВ). Такая энергия почти на 3 порядка меньше энергии, которая поступает на поверхность слоя кремния с атомами вольфрама, т.е. в разогреве поверхности слоев кремния принимает участие незначительная часть энергии, прибывающая на поверхность с атомами вольфрама. Эффективная температура поверхности осаждаемого слоя, как видно из наших оценок, заметно выше температуры подложки ( $< 350$  К). Повышение температуры на поверхности осаждаемых слоев также наблюдалась и другими авторами [42], что мы связываем с низкой теплопроводностью пленок, как двумерного объекта как такового [43].

Из оценок, сделанных выше, можно прийти к заключению, что образование силицидной прослойки на нижней межфазной границе (W-на-Si) проходит преимущественно по баллистическому механизму, т.е. большая часть силицидного слоя ( $t \leq 1,2$  нм) образуется за счет механического внедрения атомов вольфрама в слой кремния, а меньшая часть ( $t \geq 0,6$  нм) – по диффузионному механизму, т.е. за счет разогрева поверхности и последующей диффузии.

Таблица 2.

Потенциал на магнетроне (U); энергия распыленных атомов ( $E_K$ ); материал слоя на подложке; глубина проникновения распыленных атомов в материал слоя на подложке при нормальном падении [ $X(0^\circ)$ ] и при  $45^\circ$  [ $X(45^\circ)$ ]; общая энергия распыленных атомов (E); коэффициент диффузии в силицидных прослойках (D); ожидаемая температура в силицидных прослойках (T) .

Атом	$U_{W(Si)}$ , В	$E_K$ , эВ	Слой на подложке	$X(0^\circ)$ , нм	$X(45^\circ)$ , нм	E (W,Si), эВ	$D \times 10^{16}$ , $cm^2/c$	T, К
W	550	32,5	Si	1,7	1,2	~46	–	–
			WSi <sub>2</sub>	1	0,7		~7,6	~626
			W <sub>5</sub> Si <sub>3</sub>	0,6	0,4		–	–
Si	650	11,2	WSi <sub>2</sub>	0,4	0,3	~15,5	~64,3	~685
			W <sub>5</sub> Si <sub>3</sub>	0,3	0,3		–	–
			W	0,3	0,3		–	–

Аналогично для атомов кремния при потенциале на кремниевой мишени  $U_{Si} \sim 650$  В средняя кинетическая энергия распыленных атомов составляет  $E_K \sim 11,2$  эВ/атом. Несмотря на то, что средняя энергия атомов кремния примерно в 3 раза ниже по сравнению с распыленными атомами вольфрама, средняя энергия, приходящаяся на одну молекулу дисилицида, в случае распыления кремния меньше только на ~30%, поскольку на одну молекулу приходится 2 атома кремния. Проникновение атомов кремния в слой вольфрама и всех его силицидов, согласно расчетам TRIM, не превышает 0,3 нм (таблица 2). При общей толщине верхней силицидной прослойки ~0,9 нм, очевидно, что баллистическое перемешивание может обеспечить формирование только трети этой прослойки. Аналогичные процедуры с удельной теплотой конденсации ( $E_C \sim 3,97$  эВ/атом), средней кинетической энергией атомов и теплотой образования силицида на верхней границе (Si-на-W) дают общую энергию для атомов кремния  $E(Si) = E_C + E_K + \Delta H_{298} = 4 + 11,2 + 0,85 \times 0,4 \approx 15,5$  эВ/атом, которой достаточно, чтобы расплавить верхний силицидный слой. Таким же образом по скорости осаждения кремния и толщине “диффузионной” составляющей силицидного слоя мы определили коэффициент диффузии атомов кремния в слой вольфрама:  $D_{Si} = (0,6 \times 10^{-7} cm)^2 / 0,56 c \approx 6,43 \times 10^{-15} cm^2/c$ . Эта величина примерно в 8 раз выше коэффициента диффузии  $D_W$  для нижней силицидной прослойки. Несмотря на то, что в системе W-Si кремний является преобладающим диффузантом [43], мы полагаем, что здесь в таком различии нет каких-либо физических особенностей, и большая величина для  $D_{Si}$  связана с более высокой скоростью осаждения слоев кремния (почти в 3 раза) по сравнению со скоростью осаждения вольфрама, т.е. в данном случае плотность выделяемой энергии на поверхности слоев вольфрама выше. Опираясь на вышеприведенное уравнение Аррениуса, мы получили эффективную температуру поверхности верхней силицидной прослойки ~685 К, т.е. всего на ~60° выше, чем на нижней силицидной границе. Таким образом, из расчетов, сделанных в данном параграфе, можно прийти к заключению, что верхняя силицидная прослойка (Si-на-W) формируется преимущественно по диффузионному механизму, т.е. большая часть силицидного слоя ( $t \leq 0,6$  нм) образуется диффузионным путем, и меньшая часть ( $t \geq 0,3$  нм) – путем механического внедрения атомов кремния в слой вольфрама.

Из данных, приведенных в данном подразделе, следует, что для многослойной системы W-Si возможно 2 подхода к снижению взаимодействия на межфазных границах Si и W: 1) уменьшение энергии распыленных атомов, например путем понижения напряжения горения магнетронов либо повышения давления рабочего газа с целью термализации распыленных атомов [44]; 2) снижение скорости осаждения. Снижение энергии осаждаемых атомов может вызвать развитие шероховатости [45]. Кроме того, оба подхода предполагают снижение скоростей осаждения, что может привести к повышенному содержанию нежелательных примесей (O, C, N), отрицательный результат чего может проявиться, например, в повышении поглощения слоев либо в неравномерном взаимодействии слоев, что, в конечном счете, повлияет на шероховатость. Все это неизменно скажется на эффективности МРЗ. Поэтому оба подхода требуют оптимизации, т.е. проведения дополнительных исследований.

### ВЫВОДЫ

Методами рентгеновской дифрактометрии исследована структура и фазовый состав многослойных рентгеновских зеркал (МРЗ) W/Si, которые используются в качестве рентгено-оптических элементов в мягкой рентгеновской области ( $\lambda = 0,7-3,1$  нм). Проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы:

1. Слои вольфрама толщиной  $2,7 < t_W < 10$  нм имеют поликристаллическую (ОЦК) структуру. В кристаллических слоях действуют растягивающие напряжения, которые не превышают 1,1 ГПа. При толщинах

вольфрама  $t_w < 1,9$  нм МРЗ становятся полностью аморфными. Во всех слоях вольфрама содержится, по меньшей мере, 3 ат.% кремния.

2. Аморфные слои вольфрама имеют структуру, близкую к  $\beta$ -W. В прослойках на обеих межфазных границах присутствует аморфный дисилицид вольфрама ( $WSi_2$ ). В зависимости от скорости осаждения вольфрама структура прослоек меняется от тетрагональной ( $t$ - $WSi_2$ ;  $\sim 0,6$  нм/с) до гексагональной ( $h$ - $WSi_2$ ;  $\sim 0,15$  нм/с).

3. Для зеркал с  $t_w > 1,3$  нм уточнена модель строения аморфных МРЗ W/Si, осажденных с маленькой скоростью напыления вольфрама ( $\sim 0,15$  нм/с), согласно которой аморфный вольфрам имеет расположение атомов, близкое к  $\beta$ -W. На верхней и нижней (по отношению к слоям вольфрама) межфазных границах присутствуют аморфные силицидные прослойки, содержащие  $WSi_2$ , близкий по расположению атомов к гексагональному  $WSi_2$ . Нижняя прослойка состоит в основном из дисилицида. Верхняя прослойка состоит частично из дисилицида вольфрама, а частично из аморфного вольфрама.

4. Предложены механизмы формирования силицидных прослоек, согласно которым нижняя силицидная прослойка (граница W-на-Si) формируется преимущественно вследствие баллистического перемешивания, а верхняя силицидная прослойка (Si-на-W) образуется преимущественно по диффузионному механизму.

5. Сделаны оценки коэффициентов диффузии в силицидных прослойках, которые позволили установить, что эффективная температура поверхности осаждаемых слоев может быть, по меньшей мере, на  $250^\circ$  выше температуры подложки.

### БЛАГОДАРНОСТИ

Автор выражает благодарность ISKCON за помощь в понимании роли и значимости данной работы.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Uspenskii Yu., Burenkov D., Hatano T., Yamamoto M. Optimal design of multilayer mirrors for Water-Window microscope optics // *Opt. Rev.* - 2007. - Vol. 14. - P.64-73.
2. Artyukov I., Bugayev Ye., Devizenko O., Gullikson E., Kondratenko V., Vinogradov A. X-ray Schwarzschild objective for the carbon window ( $\lambda \sim 4.5$  nm) // *Opt. Lett.* - 2009. - Vol. 34. - P.2930-2932.
3. Mojarad N., Gobrecht J., Ekinci Y. Beyond EUV lithography: a comparative study of efficient photoresists' performance // *Scientific Reports.* - 2015. - Vol. 5. - P. 9235.
4. Spiller E. Recent advances in x-ray optics // *Proc. SPIE: Laser-Generated, Synchrotron, and Other Laboratory X-Ray and EUV Sources, Optics, and Applications II* / Ed. by G.A. Kyrala et al. - San Diego, California, 2005. - Vol. 5918. - P. 591806.
5. Singh K.P. Grazing incidence optics for X-ray astronomy // *Journal of Optics.* - 2011. - Vol. 40. - P.88-95.
6. Heilmann R.K., Ahn M., Gullikson E.M., Schattenburg M.L. Blazed high-efficiency x-ray diffraction via transmission through arrays of nanometer-scale mirrors // *Optics Express.* - 2008. - Vol. 16. - P.8658-8669.
7. Wang Y., Yun W., Jacobsen C. Achromatic Fresnel optics for wideband extreme-ultraviolet and X-ray imaging // *Nature.* - 2003. - Vol. 424. - P.50-53.
8. Braun S., Gawlitza P., Menzel M., Leson A., Mertin M., Schäfers F. Reflectance and Resolution of Multilayer Monochromators for Photon Energies from 400 – 6000 eV // *Synchrotron Radiation Instrumentation: 9th International Conference* / Ed. by J.-Y. Choi et al. - Daegu, Korea, 2006. - P.493-496.
9. Kuki M., Uemura T., Yamaguchi M., Harada T., Watanabe T., Muramatsu Y., Kinoshita H. Development of high-reflective W/Si diffraction grating for the analysis of fluorine materials. // *Journal of Photopolymer Science and Technology.* - 2015. - Vol. 28. - P.531-536.
10. Windt D.L., Christensen F.E., Craig W.W., Hailey C., Harrison F.A., Jimenez-Garate M., Kalyanaraman R., Mao P.H. Growth, structure, and performance of depth-graded W/Si multilayers for hard x-ray optics // *Journal of Applied Physics.* - 2000. - Vol. 88. - P.460-470.
11. Sell B., Sanger A., Schulze-Icking G., Pomplun K., Krautschneider W. Chemical vapor deposition of tungsten silicide ( $WSi$ ) for high aspect ratio applications // *Thin Solid Films.* - 2003. - Vol. 443. - P.97-107.
12. Pauleau Y., Dassapa F.C., Lami Ph., Oberlin J.C., Romagna F. Silicide formation in metal/Si structures and diffusion barrier properties of CVD tungsten films // *Journal of Material Research.* - 1989. - Vol. 4. - P.156-162.
13. Wang M.T., Lin Y.C., Lee J.Y., Wang C.C., Chen M.C. Thin-Film Properties and Barrier Effectiveness of Chemically Vapor Deposited Amorphous  $WSi_x$  Film // *J. Electrochem. Soc.* - 1998. - Vol. 145. - P.4206-4211.
14. Backhouse C.J., Este G., Sit J.C., Dew S.K., Brett M.J.  $WSi_x$  thin films for resistors // *Thin Solid Films.* - 1997. - Vol. 311. - P.299-303.
15. Fujimura N., Tachibana S., Ito T., Hosokawa N. Structural control of nonequilibrium  $WSi_{2,6}$  thin films by external stress // *Journal of Applied Physics.* - 1993. - Vol. 73. - P.733-739.
16. Tung B.T., Dao D.V., Toriyama T., Sugiyama S. Measurement of mechanical and thermal properties of co-sputtered  $WSi$  thin film for MEMS applications // *Microsystem Technologies.* - 2010. - Vol. 16. - P.1881-1886.
17. Divochiy A., Marsili F., Bitauld D., Gaggero A., Leoni R., Mattioli F., Korneev V., Kaurova N., Minaeva O., Gol'tsman G., Lagoudakis K.G., Benkhaoul M., Levy F., Fiore A. Superconducting nanowire photon-number-resolving detector at telecommunication wavelengths // *Nature Photonics.* - 2008. - Vol. 2. - P.302-306.
18. Marsili F., Verma V.B., Stern J.A., Harrington S., Lita A.E., Gerrits T., Vayshenker I., Baek B., Shaw M.D., Mirin R.P., Nam S.W. Detecting single infrared photons with 93% system efficiency // *Nature Photonics.* - 2013. - Vol. 7. - P.210-214.
19. Lukovic J., Zagorac D., Schön J.C., Zagorac J., Jordanov D., Volkov-Husovic T., Matovic B. // *Tungsten Disilicide ( $WSi_2$ ): Synthesis, Characterization, and Prediction of New Crystal Structures.* - 2017. - Vol. 643. - P.2088-2094.

20. Stoetzel J., Schneider T., Mueller M.M., Kleebe H.-J., Wiggers H., Schierning G., Schmechel R. Microstructure and thermoelectric properties of Si-WSi<sub>2</sub> nanocomposites // *Acta Materialia*. – 2017. – Vol. 125. – P.321-326.
21. Koch F., Bolt H. Self passivating W-based alloys as plasma facing material for nuclear fusion // *Phys. Scr.* - 2007. – Vol. T128. - P.100-105.
22. Pershin Yu.P., Devizenko A.Yu., Mamon V.V., Chumak V.S., Kondratenko V.V. Struktura, fazovyy sostav i model' rosta amorfnykh mnogoslownykh rentgenovskikh zerkal W-Si, izgotovlennykh metodom magnetronnogo raspyleniya [Structure, phase composition and growth model of amorphous multilayer X-ray mirrors W-Si deposited by magnetron sputtering // *Zhurnal fiziki i inzhenerii poverhnosti* [Journal of Physics and Surface Engineering]. – 2016. – Vol. 1. – No. 1. – P.27-41. (in Russian)
23. Metallichekie stekla [Glassy Metals II] – Atomnaya struktura i dinamika, elektronnaya struktura, magnitnye svoystva [Atomic Structure and Dynamics, Electron Structure, Magnetic Properties] (Transl. from Engl.) / Ed. Beck H. et al. – Moscow: Mir, 1986. - 456 P. (in Russian).
24. International Centre for Diffraction Data (JCPDS), PCPDFWIN #040806, 2000.
25. Bajt S., Stearns D.G., Kearney P.A. Investigation of the amorphous-to-crystalline transition in Mo/Si multilayers // *Journal of Applied Physics*. - 2001. - Vol. 90. - P.1017-1025.
26. Andreev S.S., Gaponov S.V., Gusev S.A., Haidl M.N., Kluenkov E.B., Prokhorov K.A., Polushkin N.I., Sadova E.N., Salashchenko N.N., Suslov L.A., Zuev S.Yu. The microstructure and X-ray reflectivity of Mo/Si multilayers // *Thin Solid Films*. - 2002. - Vol. 415. - P.123-132.
27. Zubarev E.N., Kondratenko V.V., Pershyn Yu.P., Sevryukova V.A. Growth and crystallization of molybdenum layers on amorphous silicon // *Thin Solid Films*. - 2011. - Vol. 520. - P.314-319.
28. Krüger M., Franz S., Saage H., Heilmaier M., Schneibel J.H., Jehanno P., Boning M., Kestler H. Mechanically alloyed Mo–Si–B alloys with a continuous a-Mo matrix and improved mechanical properties // *Intermetallics*. - 2008. - Vol. 16. - P.933-941.
29. Diagrammy sostojaniya dvoynnykh metallicheskih sistem [Constitution diagram of binary metallic systems]. - Handbook, Vol. 3 / Ed. N.P. Ljakishev. - Moscow: Machine-building, 2000. - 448 P. (in Russian)
30. Gautier J., Delmotte F., Bridou F., Ravet M.F., Varniere F., Roullay M., Jerome A., Vickridge I. Characterization and optimization of magnetron sputtered Sc/Si multilayers for extreme ultraviolet optics // *Appl. Phys. A*. - 2007. - Vol. 88. - P.719-725.
31. Pinegyn V.I., Zubarev E.N., Kondratenko V.V., Sevryukova V.A., Yulin S.A., Feigl T., Kaiser N. Structure and stressed state of molybdenum layers in Mo/Si multilayers // *Thin Solid Films*. - 2008. - Vol. 516. - P.2973-2980.
32. International Centre for Diffraction Data (JCPDS), PCPDFWIN #441055; 2000.
33. Mal'tsev V.M. Metallografija promyshlennykh tsvetnykh metallov i splavov [Metallography of industrial nonferrous metals and alloys]. - Moscow: Metallurgy, 1970. - 364 P. (in Russian)
34. Morcom W.R., Worrell W.L., Sell H.G., Kaplan H.I. The Preparation and characterization of  $\beta$ -Tungsten, a metastable tungsten phase // *Metallurgical transactions*. - 1974. - Vol. 160. - P.155-161.
35. Doland C.M. Molybdenum silicide formation on single crystal, polycrystalline and amorphous silicon: growth, structure and electrical properties // Dissertation for the PhD degree. - Houston: University of Houston-University Park, 1988. - 332 p.
36. Jarrige I., Capron N., Jonnard P. Electronic structure of Ni and Mo silicides investigated by X-ray emission spectroscopy and density functional theory // *Physical Review*. - 2009. - Vol. 79. - 035117.
37. Fujiwara H., Ueda Y., Awasthi A., Krishnamurthy N., Garg S.P. Determination of the standard free energies of formation for tungsten silicides by EMF measurements using lithium silicate liquid electrolyte // *Journal of Alloys and Compounds*. - 2005. - Vol. 391. - P.307-312
38. Pretorius R. Prediction of silicide formation and stability using heats of formation // *Thin Solid Films*. - 1996. - Vol. 290-291. - P.477-484.
39. <http://www.srim.org/SRIM/SRIMLEGL.htm>
40. LARGERON C., QUESNEL E., THIBAUT J. Interface growth mechanism in ion beam sputtering-deposited Mo/Si multilayers // *Philosophical Magazine*. - 2006. - Vol. 86. - P.2865-2879.
41. De Luca A., Portavoce A., Texier M., Grosjean C., Burle N., Oison V., Pichaud B. Tungsten diffusion in silicon // *J. Appl. Phys.* - 2014. - Vol. 115. - P.013501.
42. Shaginyan L.R., Han J.G., Shaginyan V.R., Musil J. Evolution of film temperature during magnetron sputtering // *J. Vac. Sci. Technol. A*. - 2006. - Vol. 24. - P.1083-1090.
43. Murarka S.P. Silicides for VLSI application. – Bell Telephone Lab. Inc., 1983. – 176 p.
44. Pershyn Y.P., Gullikson E.M., Kondratenko V.V., Mamon V.V., Reutskaya S.A., Voronov D.L., Zubarev E.N., Artyukov I.A., Vinogradov A.V. Effect of working gas pressure on interlayer mixing in magnetron-deposited Mo/Si multilayers // *Optical Engineering*. - 2013. - Vol.52. - P.095104.
45. Windt D.L., Hull R., Waskiewicz W.K. Interface imperfections in metal/Si multilayers // *J. Appl. Phys.* - 1992. - Vol. 71. - P.2675-2678.

PACS: 07.85.-m; 81.70.-q; 25.40.Dn; 29.40.Mc; 77.84.Fa

## SCINTILLATION MONOCRYSTALS OF KDP:TI AND KDP:Ce DOPED BY THALLIUM AND CERIUM FOR SELECTIVE DETECTION OF FAST NEUTRONS

A.P. Voronov<sup>1</sup>, S.V. Naydenov<sup>1</sup>, I.M. Pritula<sup>1</sup>,  
G.M. Onyshchenko<sup>2,3\*</sup>, A.F. Shchus<sup>2</sup>, I.I. Yakymenko<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute for Single Crystals, National Academy of Sciences of Ukraine  
60 Nauky Ave., Kharkiv, 61001, Ukraine

<sup>2</sup>V.N. Karazin Kharkiv National University  
6 Svobody Sq., Kharkiv, 61022, Ukraine

<sup>3</sup>Institute for Scintillation Materials, National Academy of Sciences of Ukraine  
60 Nauky Ave., Kharkiv, 61001, Ukraine

\*E-mail: [gennadiy.m.onyshchenko@karazin.ua](mailto:gennadiy.m.onyshchenko@karazin.ua), <https://orcid.org/0000-0001-6945-8413>

Received 9 June 2018; revised 15 July 2018; accepted 10 September 2018

This research is going to explain the fast neutrons and gamma radiation registration by the new inorganic single crystals of the KDP (Potassium Dihydrogen Phosphat) group that was grown from the water solutions and activated by the thallium  $Tl^+$  or cerium  $Ce^{3+}$ . The appearance of the luminescence upon KDP:TI crystals irradiation with the fast neutrons is explained by secondary ionizing radiation (recoil protons and oxygen recoil nuclei) with excitation of the activator under ionization losses for inhibition. Also the recombination mechanism with the radiation defects of the hydrogen sublattice going to transmit electron excitations to the region of the  $Tl^+$  luminescence center. In the KDP:Ce crystals the excitation mechanism of the activator has a similar character, but the luminescence itself is due to the  $5d \rightarrow 4f$  transition in  $Ce^{3+}$  ions. The detection efficiency for activated KDP:TI and KDP:Ce crystals to the fast neutrons in comparisons with organic (plastic) scintillators were calculated theoretically and experimentally. For the crystal volume about  $10 \times 10 \times 10$  mm<sup>3</sup> with the optimal activator concentration the fast neutron detection efficiency under irradiation of <sup>239</sup>Pu-Be is 12% for KDP:TI and 16% for KDP:Ce, which is in a consistent with the theoretical calculation and is not lower according to the parameters of typical organic scintillators. A high natural selectivity of the KDP scintillators to the fast neutrons due to their low sensitivity to gamma radiation was detected. Herewith the internal discrimination of  $n/\gamma$  signals (the ratio of detection efficiencies for the fast neutrons and gamma quants) for activated KDP crystals is 7-8 times higher than of regular plastic scintillators.

**KEYWORDS:** fast neutrons, KDP-type single crystals, scintillation detectors, detection efficiency, neutron/gamma discrimination

## СЦИНТИЛЯЦІЙНІ МОНОКРИСТАЛИ KDP:TI І KDP:Ce АКТИВОВАНІ ТАЛІЄМ І ЦЕРІЄМ ДЛЯ СЕЛЕКТИВНОГО ДЕТЕКТУВАННЯ ШВИДКИХ НЕЙТРОНІВ

О.П. Воронов<sup>1</sup>, С.В. Найдѐнов<sup>1</sup>, І.М. Пritула<sup>1</sup>,  
Г.М. Онищенко<sup>2,3</sup>, О.П. Щусь<sup>2</sup>, І.І. Якименко<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Інститут монокристалів, Національна академія наук України  
61001, Україна, м. Харків, пр. Науки, 60

<sup>2</sup> Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна  
61022, Україна, м. Харків, м. Свободи, 4

<sup>3</sup> Інститут сцинтиляційних матеріалів, Національна академія наук України  
61001, Україна, м. Харків, пр. Науки, 60

Досліджено детектування швидких нейтронів і гамма-випромінювання новими неорганічними монокристаллами групи KDP, активованих талієм  $Tl^+$  або церієм  $Ce^{3+}$  і вирощених з водних розчинів. Виникнення люмінесценції при опроміненні швидкими нейтронами в сцинтиляційних кристалах KDP:TI обумовлено вторинним іонізуючим випромінюванням (протони віддачі і ядра віддачі кисню) із збудженням активатора при іонізаційних втратах на гальмування, а також рекомбінаційним механізмом за участю радіаційних дефектів водневої підґратки, що передає електронні збудження в околицю центру світіння  $Tl^+$ . У кристалах KDP:Ce механізм збудження активатора має аналогічний характер, але сама люмінесценція зумовлена переходом  $5d \rightarrow 4f$  в іонах  $Ce^{3+}$ . Для активованих кристалів KDP:TI і KDP:Ce теоретично і експериментально визначено ефективність детектування швидких нейтронів, а також проведено порівняння з органічними (пластиковими) сцинтиляторами. Для оброблених кристалів розміром  $10 \times 10 \times 10$  мм<sup>3</sup> з оптимальною концентрацією активатора ефективність детектування швидких нейтронів при опроміненні <sup>239</sup>Pu-Be джерелом досягає 12% для KDP:TI і 16% для KDP:Ce, що добре узгоджується з наведеними теоретичними розрахунками і є близькою до параметрів поширених органічних сцинтиляторів. Виявлена висока природна селективність KDP-сцинтиляторів при детектуванні швидких нейтронів за рахунок їх низької чутливості до гамма-випромінювання. При цьому внутрішній поділ  $n/\gamma$  сигналів (відношення ефективностей детектування при реєстрації швидких нейтронів і гамма-квантів) для активованих кристалів KDP в 7-8 разів перевищує параметри традиційних пластикових сцинтиляторів.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** швидкі нейтрони, KDP-монокристали, сцинтиляційні детектори, ефективність детектування, нейтрон/гамма дискримінація

**СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ МОНОКРИСТАЛЛЫ KDP:TI И KDP:Ce АКТИВИРОВАННЫЕ ТАЛЛИЕМ И ЦЕРИЕМ ДЛЯ СЕЛЕКТИВНОГО ДЕТЕКТИРОВАНИЯ БЫСТРЫХ НЕЙТРОНОВ****А.П. Воронов<sup>1</sup>, С.В. Найденюв<sup>1</sup>, И.М. Питула<sup>1</sup>,  
Г.М. Онищенко<sup>2,3</sup>, А.Ф. Щусь<sup>2</sup>, И.И. Якименко<sup>2</sup>**<sup>1</sup> *Институт монокристаллов, Национальная академия наук Украины  
61001, Украина, г. Харьков, пр. Науки, 60*<sup>2</sup> *Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина  
61022, Украина, г. Харьков, пл. Свободы, 4*<sup>3</sup> *Институт сцинтилляционных материалов, Национальная академия наук Украины  
61001, Украина, г. Харьков, пр. Науки, 60*

Исследовано детектирование быстрых нейтронов и гамма-излучения новыми неорганическими монокристаллами группы KDP, активированных таллием  $Tl^+$  или церием  $Ce^{3+}$  и выращенных из водных растворов. Возникновение люминесценции при облучении быстрыми нейтронами в сцинтилляционных кристаллах KDP:TI обусловлено вторичным ионизирующим излучением (протоны отдачи и ядра отдачи кислорода) с возбуждением активатора при ионизационных потерях на торможение, а также рекомбинационным механизмом с участием радиационных дефектов водородной подрешетки, передающих электронные возбуждения в окрестность центра свечения  $Tl^+$ . В кристаллах KDP:Ce механизм возбуждения активатора имеет аналогичный характер, но сама люминесценция обусловлена переходом  $5d \rightarrow 4f$  в ионах  $Ce^{3+}$ . Для активированных кристаллов KDP:TI и KDP:Ce теоретически и экспериментально определена эффективность детектирования быстрых нейтронов, а также проведено сравнение с органическими (пластмассовыми) сцинтилляторами. Для обработанных кристаллов размером  $10 \times 10 \times 10$  мм<sup>3</sup> с оптимальной концентрацией активатора эффективность детектирования быстрых нейтронов при облучении <sup>239</sup>Pu-Be источником достигает 12% для KDP:TI и 16% для KDP:Ce, что находится в хорошем согласии с приведенным теоретическим расчетом и не уступает параметрам распространенных органических сцинтилляторов. Обнаружена высокая естественная селективность KDP-сцинтилляторов при детектировании быстрых нейтронов за счет их низкой чувствительности к гамма-излучению. При этом внутреннее разделение  $n/\gamma$  сигналов (отношение эффективностей детектирования при регистрации быстрых нейтронов и гамма-квантов) для активированных кристаллов KDP в 7-8 раз превосходит параметры традиционных пластиковых сцинтилляторов.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** быстрые нейтроны, KDP-монокристаллы, сцинтилляционные детекторы, эффективность детектирования, нейтрон/гамма дискриминация

Несмотря на разнообразие типов разработанных к настоящему времени детекторов быстрых нейтронов [1-5] и используемых в них твердых, жидких и газообразных детектирующих сред, задача эффективной раздельной регистрации быстрых нейтронов в смешанных  $n/\gamma$  радиационных полях, создаваемых различными ядерными источниками, в полной мере не решена и остается весьма актуальной. Как правило, многие из материалов, которые хорошо регистрируют быстрые нейтроны, в том числе по реакции упругого рассеяния с образованием протонов отдачи [6], одновременно обладают излишней чувствительностью к сопутствующему (или фоновому) гамма-излучению [7, 8]. Из-за этого для раздельной регистрации нейтронов приходится дополнительно использовать непростые методы разделения аппаратных сигналов по форме, амплитуде и длительности импульсов. Поэтому поиск новых детектирующих материалов, которые изначально обладают высокой внутренней селективностью к нейтронам и гамма-излучению, представляет особый интерес для многих радиационных приложений.

К числу методов регистрации быстрых нейтронов относится метод детектирования протонов отдачи, возникающих при упругом рассеянии нейтронов в водородсодержащих средах. Для многих приложений достаточно ограничиться применением быстрых нейтронов с энергиями от 100 keV до 10 MeV. Их детектирование можно осуществить в твердых или жидких водородсодержащих сцинтилляторах. Наибольшее распространение получили твердотельные детекторы с использованием органических (молекулярных) кристаллов антрацена, стильбена и др. [9] или пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола, полиметилметакрилата и др. с активаторами и спектросмещающими добавками. Однако все эти детекторы имеют высокую чувствительность к сопутствующему гамма-излучению низких и средних энергий. Для того, чтобы исключить его влияние, в таких детекторах используют различные методы пассивной и активной защиты, а также метод разделения сигналов по форме импульса [10].

Недавно в Институте монокристаллов (Харьков, Украина) удалось вырастить из водных растворов сцинтилляционные кристаллы дигидрофосфата калия  $KH_2PO_4$  (KDP), допированные ионами таллия  $Tl^+$  или церия  $Ce^{3+}$  [11-14]. Уникальность полученных кристаллов KDP:TI и KDP:Ce состоит в том, что они занимают промежуточное положение между органическими и неорганическими сцинтилляторами. С одной стороны, каждый кристалл из семейства KDP – это типичный широкозонный ( $E_g = 8,8$  эВ) неорганический диэлектрик с сильными ковалентными связями в фосфатной анионной группе  $H_2PO_4^-$ , связанной менее сильной ионной связью с катионной подрешеткой ионов  $K^+$ . С другой стороны, этот кристалл содержит высокоподвижную (при комнатных температурах) подрешетку атомов водорода, насыщенную многочисленными водородными связями с близлежащими атомами кислорода. Концентрация ядер водорода в решетке KDP составляет  $\sim 2,07 \times 10^{22}$  см<sup>-3</sup>. Это примерно вдвое меньше, чем концентрация атомов водорода в пластиковых (полистирол и др.) или молекулярных (антрацен и др.) органических сцинтилляторах. Однако, как следует из приведенных далее расчетов и экспериментов, этого вполне достаточно для эффективной регистрации быстрых нейтронов.

Основная цель данной работы – исследовать сцинтилляционные свойства и возможное применение активированных таллием и церием кристаллов KDP:Tl и KDP:Ce в качестве эффективных сред для селективного детектирования быстрых нейтронов в смешанных  $n/\gamma$  радиационных полях.

### ВЫРАЩИВАНИЕ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ МОНОКРИСТАЛЛОВ KDP:Tl И KDP:Ce

Чистые (не активированные различными добавками) неорганические кристаллы KDP традиционно выращивают из водных растворов методом снижения температуры. Таким методом могут быть выращены кристаллы KDP очень больших размеров с апертурой вплоть до  $50 \times 50$  см<sup>2</sup> и весом до 500 кг [15]. Чистые кристаллы имеют широкую полосу оптической прозрачности (175-1500 нм), высокое структурное совершенство (плотность дислокаций  $< 10^2$  см<sup>-2</sup>) и высокую радиационную прочность к действию различных видов ионизирующего излучения. Коэффициент оптического поглощения в этих кристаллах не изменяется при облучении мощными потоками протонов с флюенсом до  $10^{13}$  протон/см<sup>2</sup>, быстрых нейтронов – до  $10^{10}$  нейтрон/см<sup>2</sup> или гамма-частиц – с дозой нагрузкой вплоть до  $10^5$  Gy ( $10^7$  рад) [16]. Отметим, что именно наличие в структуре KDP обширных водородных связей позволяет достаточно легко включать в матрицу кристалла различные неорганические и органические добавки [17].



Рис. 1. Образцы обработанных кристаллов KDP:Tl с различной концентрацией активатора (слева и посередине) и KDP:Ce (справа) разного размера.

Монокристаллы KDP:Tl и KDP:Ce выращивали из водного раствора (с пересыщением не менее 5%) методом снижения температуры в интервале 40-60°C. Соль  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  синтезировали из реагентов KOH и  $\text{H}_3\text{PO}_4$  квалификации «extra pure substance». Допант  $\text{Tl}^+$  в концентрации  $10^{-2}$ ,  $10^{-1}$  и 1,0 wt. % вводили в маточный раствор в виде водного раствора соли  $\text{TlNO}_3$ . Прямое допирование церием в виде водного раствора  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$  было невозможно из-за образования нерастворимого в воде фосфата церия  $\text{CePO}_4$ . Поэтому допант  $\text{Ce}^{3+}$  в концентрации  $10^{-2}$  wt.% вводили [14] в маточный раствор в виде водного раствора органо-металлического комплекса (AC-Ce) вида  $(\text{C}_{19}\text{H}_{15}\text{NO}_8 - \text{Ce}^{3+})$ , где  $\text{C}_{19}\text{H}_{15}\text{NO}_8$  – органический лиганд ализарин-комплексон (AC). Содержание таллия в секторах призмы и пирамиды оказалось примерно одинаковым. Следовательно, примесь распределяется по секторам роста относительно равномерно. Содержание церия в секторах роста призмы и пирамиды оказалось разным – равным  $10^{-2}$  wt.% и  $5 \times 10^{-3}$  wt.%, соответственно.

На рис. 1 показаны вырезанные из заготовок и обработанные монокристаллы KDP:Tl и KDP:Ce типичных размеров, которые были использованы в последующих измерениях.

### МЕХАНИЗМ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО ОТКЛИКА В АКТИВИРОВАННЫХ КРИСТАЛЛАХ KDP

Рассмотрим природу свечения и механизм люминесценции в кристаллах KDP:Tl<sup>+</sup>. Ион таллия  $\text{Tl}^+$  – это хорошо известный активатор, формирующий электронные  $s^2$ -центры в кубических щелочно-галлоидных кристаллах [18]. Центр  $\text{Tl}^+$  в кристаллах KDP:Tl<sup>+</sup> – это единственный подтвержденный  $s^2$ -центр в некубической собственной решетке, для которого возможны  $s^2 \rightarrow sp$  переходы, соответствующие полосам поглощения в обычных щелочно-галлоидных кристаллах [19].

Возбуждение люминесценции под воздействием рентгеновских лучей в кристаллах KDP:Tl было рассмотрено в работе [20], в которой предложена модель рекомбинационного механизма люминесценции. Ионизирующее излучение, как обычно, приводит к генерации основных носителей заряда – зонных электронов и дырок и образованию связанных электронно-дырочных пар. Кроме того, под его воздействием в водородной подрешетке кристаллов KDP:Tl возникают пары противоположных френкелевских дефектов в виде межузельного иона  $\text{H}^+$  (D-дефект) и вакансии водорода  $\text{V}_{\text{H}}^+$  (отрицательно заряженный L-дефект). D-дефект после захвата зонного электрона превращается в межузельный нейтральный атом водорода –  $\text{H}^0$ -центр, который обладает высокой подвижностью в кристалле. L-дефект, локализованный на анионе  $(\text{H}_2\text{PO}_4)^-$ , после захвата дырки превращается в другой центр захвата – A-радикал. Оба указанных центра в дальнейшем могут испытывать диффузию по решетке и рекомбинацию с основными зонными носителями заряда ( $\text{H}^0$ -центр

с дыркой, а А-радикал с электроном, соответственно). В результате рекомбинации электрона и дырки заряженный центр возвращается в свое исходное состояние. При обычных условиях в широком температурном интервале эта рекомбинация является безизлучательной [21,22]. Но, перенос энергии, высвобождаемой во время такой рекомбинации, может приводить к возбуждению иона  $Tl^+$  в случае, если центр захвата расположен в непосредственной близости от него. Кроме того, возбуждение иона  $Tl^+$  может происходить непосредственно вторичными ионизирующими частицами, хотя доля переданной при этом энергии излучения будет не столь значительной, так как концентрация допанта является достаточно низкой. В конечном итоге во всех случаях спектральный состав радиoluminesценции кристалла KDP: $Tl^+$  определяется низшим излучательным переходом таллия  $^3P_1 \rightarrow ^1S_0$  на основной уровень. Максимум радиoluminesценции соответствует 275 нм (4,5 эВ). Каскадные переходы с более высоких возбужденных уровней таллия на самый низкий возбужденный уровень остаются безизлучательными.

Сцинтилляционный отклик кристалла KDP:Ce обусловлен аналогичным механизмом люминесценции. Отличия касаются переноса возбуждения на центр свечения, которым является ион церия  $Ce^{3+}$ , и снятие с него возбуждения с высвечиванием импульса радиoluminesценции. Импульс радиoluminesценции кристаллов KDP:Ce обусловлен конфигурационными переходами с нижнего уровня 5d-оболочки ионов  $Ce^{3+}$  на уровни основного состояния 4f-оболочки. Максимум спектра сцинтилляций соответствует  $\lambda_{em} = 350$  нм (3,54 эВ). В отличие от кристаллов KDP:Tl он сдвинут в длинноволновую область, что несколько увеличивает чувствительность (и эффективность) детектирования быстрых нейтронов при использовании обычных бищелочных фотоумножителей.

Особенности описанного выше рекомбинационного механизма сохраняются при рассмотрении люминесценции KDP:Tl и KDP:Ce под облучением быстрыми нейтронами. Однако эффективность образования и концентрация решеточных дефектов внутри водородной подрешетки будет на порядок выше, так кристалл облучается тяжелыми частицами. При упругом рассеянии быстрых нейтронов с характерной энергией выше 0,5 МэВ в матрице KDP возникают ионизационные потоки отдачи легких ядер – протонов (при рассеянии нейтронов на ядрах водорода) и ядер кислорода. Атомы кислорода в решетке KDP связаны многочисленными водородными связями с атомами водорода. Поэтому отдача от ядер кислорода будет приводить к сравнимому эффекту ионизации и возбуждения водородной подрешетки, который производят одни протоны отдачи. Вкладом в передачу энергии ионизирующего излучения при отдаче более тяжелых ядер калия (атомный вес  $A=39$ ) и фосфора ( $A=31$ ) можно пренебречь, так как суммарные потери энергии нейтрона  $E_n$  на этих ядрах пропорциональны  $\Delta E_n \sim E_n/A$  и составляют менее 6% по сравнению с потерями на протонах отдачи. Кроме того, удельная тормозная способность и плотность ионизационных потерь при торможении ядер отдачи калия (заряд  $Z=19$ ) и фосфора ( $Z=15$ ) быстро растут с ростом заряда, что приводит к более значительному радиационному тушению люминесценции [7], чем при ионизационных потерях от выбитых ядер водорода и кислорода. При торможении протонов отдачи или легких ядер в веществе (с образованием вторичных быстрых  $\delta$ -электронов) в конечном итоге будет происходить ионизация и возбуждение атомов среды аналогично рентгеновскому облучению. Потолок валентной зоны кристалла KDP в основном заполнен состояниями 2p-орбиталей атомов кислорода, а потолок зоны проводимости – 1s-состояниями водорода. Ионизация указанных атомов будет приводить к генерации зонных носителей в кристалле. Прямая отдача первичных нейтронов и торможение вновь образованных вторичных заряженных частиц будут генерировать дефекты водородной подрешетки KDP.

### ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОСТИ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ БЫСТРЫХ НЕЙТРОНОВ KDP-СЦИНТИЛЛЯТОРАМИ

Ослабление потока нейтральных частиц, фотонов в веществе происходит по экспоненциальному закону. В реакции упругого рассеяния каждый нейтрон может многократно испытывать потерю энергии при столкновениях с ядрами среды. Однако при рассеянии на легких ядрах нейтрон быстро теряет свою энергию и ядра отдачи, возникающие после нескольких столкновений, получают от него гораздо меньшую энергию и уже не вносят существенного вклада в сцинтилляционный отклик по сравнению с вкладом от однократного рассеяния быстрых нейтронов. Если принять, что регистрируется каждое ядро отдачи, и ограничиться вкладом однократного рассеяния, то эффективность детектирования можно записать в виде

$$\mathcal{E}_n^{(1)} = \frac{\Sigma_{el}}{\Sigma_{tot}} [1 - \exp(-\Sigma_{el}h)], \quad (1)$$

где  $\Sigma_{el}$  – макроскопическое сечение упругого рассеяния нейтронов,  $\Sigma_{tot} = \Sigma_{el} + \Sigma_{non-el}$  – полное макроскопическое сечение;  $h$  – толщина материала в направлении потока нейтронов. Макроскопическое сечение для  $k$ -го канала (реакции) нейтронов  $\Sigma_k = \sum_i n_i \sigma_{i,k}$  определяется концентрациями  $n_i$  ядер  $i$ -го сорта, входящих в состав среды и микроскопическими сечениями рассеяния  $\sigma_{i,k}$ , причем  $\sigma_{i,tot} = \sigma_{i,el} + \sigma_{i,non-el}$ .

Для органических сцинтилляторов (пластик или органические монокристаллы) следует учесть, что перед рассеянием на ядрах водорода нейтрон может многократно рассеиваться на ядрах углерода, что вносит дополнительный вклад в полную эффективность детектирования. В результате суммирования вкладов многократного рассеяния вместо формулы (1) получим

$$\varepsilon_n^{ORG} = [1 - \exp(-\Sigma_H h)], \quad (2)$$

где  $\Sigma_H$  – макроскопическое сечение упругого рассеяния нейтронов на ядрах водорода.

Для сцинтилляционных кристаллов KDP следует учесть описанные ранее особенности механизма люминесценции и сцинтилляционного отклика на быстрые нейтроны и сохранить в формуле (1) вклады в сечение  $\Sigma_{el}$  упругого рассеяния не только для протонов отдачи  $^1\text{H}$ , но и для отдачи на легких ядрах кислорода  $^{16}\text{O}$ . Тогда получим

$$\varepsilon_n^{KDP} = \frac{\Sigma_H + \Sigma_O}{\Sigma_H + \Sigma_O + \Sigma_P + \Sigma_K} [1 - \exp(-(\Sigma_H + \Sigma_O)h)], \quad (3)$$

где  $\Sigma_H$  и  $\Sigma_O$  – сечения упругого рассеяния нейтронов на ядрах водорода и кислорода в составе кристалла KDP, а  $\Sigma_P$  и  $\Sigma_K$  – сечения упругого рассеяния на средних ядрах фосфора и калия, отдача которых не вносит существенный вклад в сцинтилляционный сигнал. В формуле (3) также учтено, что вклад неупругих реакций нейтронов в области энергий до 10 MeV в образование вторичных заряженных частиц и импульс сцинтилляций крайне мал.

Для теоретических расчетов использовались данные для усредненных микроскопических сечений взаимодействия нейтронов с ядрами [23]. Спектр источника нейтронов принимался равным спектру источника  $^{239}\text{Pu-Be}$  [23]. Концентрация ядер вычисляется по формуле  $n_i = \rho N_A (a_i/M)$ , где  $N_A = 6,022 \times 10^{23}$  моль $^{-1}$  – число Авогадро,  $\rho$  – плотность вещества,  $M$  – молярный вес,  $a_i$  – число атомов  $i$ -го сорта в молекуле вещества. Средняя длина свободного пробега нейтронов равна  $l_n = \Sigma_{tot}^{-1}$ .

В таблице 1 приведены теоретические значения эффективности детектирования быстрых нейтронов, вычисленные по формулам (2)-(3) для типичного пластмассового сцинтиллятора на основе полистирола, органического кристалла антрацена и для кристаллов KDP:Tl и KDP:Ce.

Таблица 1.

Теоретическое сравнение параметров и эффективности детектирования быстрых нейтронов водородсодержащими органическими и неорганическими сцинтилляторами. Толщина сцинтиллятора везде принята равной 10 мм.

Сцинтиллятор	Эффективный атомный номер	Плотность, г/см $^3$	Концентрация ядер Н, см $^{-3}$	Длина $l_n$ , см	Эффективность детектирования (теорет.), %
Пластик (полистирол)	5,7	1,04	$4,82 \times 10^{22}$	3,30	17,3
Антрацен	5,8	1,25	$4,23 \times 10^{22}$	3,26	14,3
KDP сцинтиллятор	14,3	2,34	$2,07 \times 10^{22}$	3,93	17,2

Проведенные оценки (Таблица 1) указывают на то, что KDP сцинтилляторы могут иметь эффективность регистрации быстрых нейтронов сравнимую с эффективностью детектирования традиционных органических сцинтилляторов.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ БЫСТРЫХ НЕЙТРОНОВ KDP-СЦИНТИЛЛЯТОРАМИ

Было проведено измерение эффективности регистрации быстрых нейтронов и гамма-квантов кристаллами KDP:Tl и KDP:Ce в сравнении со стандартным пластмассовым сцинтиллятором. Для измерений использовались обработанные кристаллы KDP:Tl и KDP:Ce размером  $10 \times 10 \times 10$  мм $^3$  с полированными боковыми гранями. Концентрация активатора соответствовала максимальному световыходу люминесценции. В качестве пластмассового сцинтиллятора использовался сцинтиллятор серии UPS (Институт сцинтилляционных материалов, Харьков, Украина) следующего состава: полистирол 98.5% (химическая формула  $(\text{C}_8\text{H}_8)_n$ ) + люминофор РТР 1,48% (p-терфенил) + спектросмещающая добавка РОРОР 0,02%. Исследуемый сцинтиллятор размещался в светозащитном корпусе диаметром 20 мм с диффузной отражающей пленкой типа Tetratek. Измерения амплитудных спектров проводились сборкой сцинтиллятор-ФЭУ. В качестве фотоприемника

использовался ФЭУ Hamamatsu R7056 (спектр фоточувствительности от 185 до 650 нм, максимум при 420 нм). Напряжение на ФЭУ выбиралось равным 760 В. Импульсы регистрировались с помощью многоканального анализатора. Нижний порог отсеечения импульсов 25-30 кэВ. В состав спектрометра входил быстрый предусилитель. Постоянная времени интегрирования сигнала выбиралась для всех сцинтилляторов равной ~ 6 мкс.

В качестве источника нейтронов использовался  $^{239}\text{Pu}$ -Be источник (энергии нейтронов от 0,1 до 10 МэВ, средняя энергия нейтронов  $E_n = 4,2$  МэВ). Расстояние между центрами источника нейтронов и детектора составило 20 см. Для защиты от сопутствующего гамма-излучения (фотоны с  $E_\gamma \sim 59$  кэВ от примеси  $^{241}\text{Am}$ , возникающей из продуктов распада  $^{239}\text{Pu}$ , а также высокоэнергетические кванты с  $E_\gamma \sim 0,1-4$  МэВ из других реакций) между источником нейтронов и детектором размещался свинцовый экран толщиной 50 мм (пропускание потока быстрых нейтронов было 45%). Для защиты от тепловых нейтронов использовался экран из кадмиевой фольги толщиной 1 мм. Структурная схема эксперимента приведена на рис. 2.

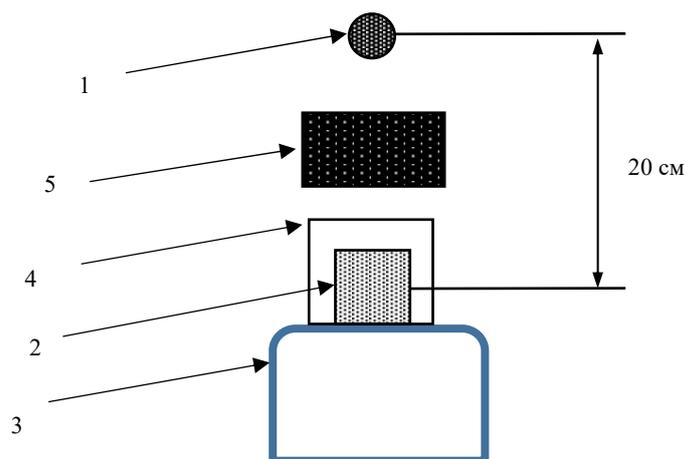


Рис. 2. Схема эксперимента

1 –  $^{239}\text{Pu}$ -Be источник нейтронов; 2 – сцинтиллятор в светозащитном корпусе; 3 – ФЭУ; 4 – Cd-экран от тепловых нейтронов; 5 – Pb-экран от гамма-излучения.

На рис. 3 приведены аппаратные спектры исследованных образцов сцинтилляторов при облучении источником нейтронов.

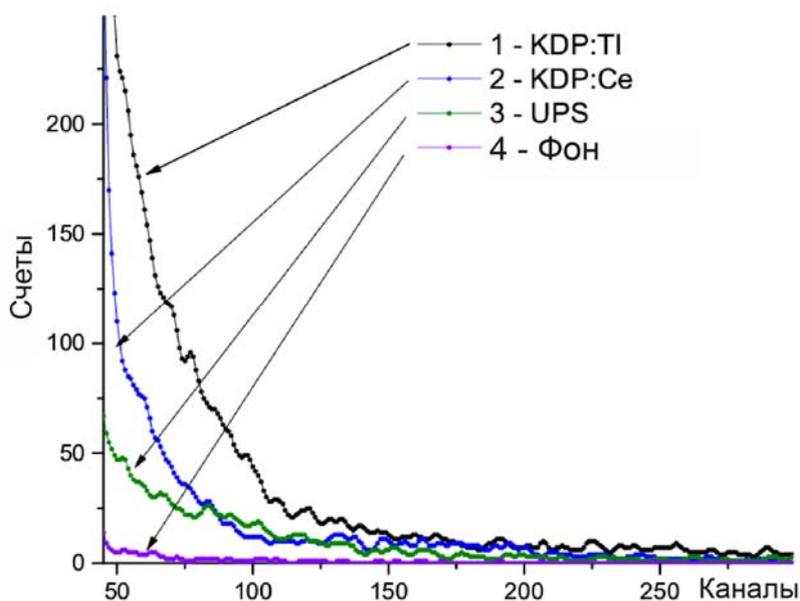


Рис. 3. Амплитудные спектры от  $^{239}\text{Pu}$ -Be источника быстрых нейтронов, полученные для сцинтилляторов 1 – KDP:Ti<sup>+</sup>; 2 – KDP:Ce<sup>3+</sup>; 3 – полистирол UPS; 4 – естественный фон. Естественный фон из измеренных спектров отклика не вычитался.

На рис. 4 приведены аппаратные спектры при облучении этих же образцов источником гамма-квантов

$^{137}\text{Cs}$ . Калибровка энергетической шкалы спектрометра выполнялась с применением этого источника. Максимум отклика  $E_\gamma = 662$  кэВ соответствует 3000 каналу спектрометра. Канал 300 соответствует  $E_\gamma = 60$  кэВ.

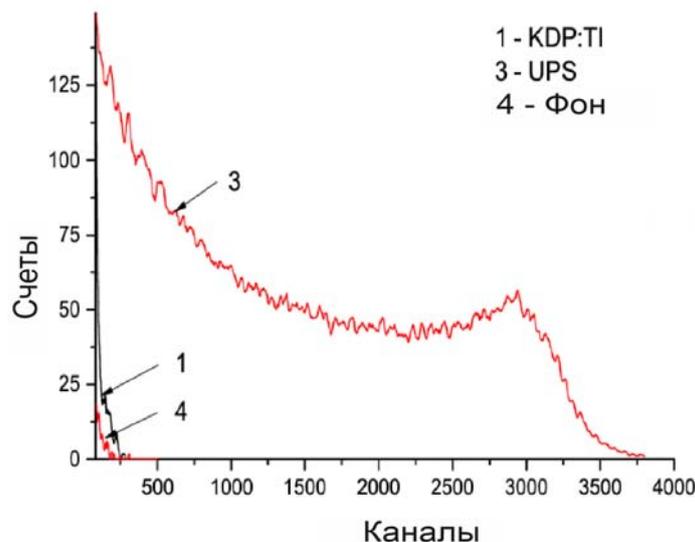


Рис. 4. Амплитудные спектры от  $^{137}\text{Cs}$ -источника гамма-квантов, полученные для скintилляторов 1 – KDP:Tl<sup>+</sup>; 2 – KDP:Ce<sup>3+</sup>; 3 – полистирол UPS; 4 – естественный фон для KDP. Естественный фон из измеренных спектров отклика не вычитался.

Из рис. 3 следует, что аппаратный отклик на нейтроны для скintилляторов KDP:Tl и KDP:Ce распространяется вплоть до энергий 300 кэВ и соответствует непрерывному спектру протонов отдачи. Эти нейтронные спектры подобны спектру для скintиллятора UPS на основе полистирола. Отклик на гамма-кванты для KDP:Tl, как видно из рис. 4, наоборот, сосредоточен только в низкоэнергетической области (менее 50 кэВ) и сильно обрезается в области высоких энергий в отличие от спектра пластикового скintиллятора. Кроме того, амплитуда отклика на гамма-кванты для KDP-скintилляторов в низкоэнергетической области сравнима с вкладом фонового излучения и примерно на порядок ниже, чем у пластика.

На основе измеренных амплитудных спектров была определена эффективность регистрации быстрых нейтронов и  $\gamma$ -квантов, представленная в таблице 2. Порог регистрации составил  $\sim 25$ -30 кэВ, 50 канал (рис. 3).

Таблица 2.

Эффективность регистрации быстрых нейтронов и  $\gamma$ -квантов скintилляторами KDP:Tl<sup>+</sup> и KDP:Ce<sup>3+</sup> размером  $10 \times 10 \times 10$  мм<sup>3</sup> и пластиковым скintиллятором серии UPS (на основе полистирола) размером  $\varnothing 16 \times 9$  мм.

Scintillator	Fast neutrons detection efficiency, $\varepsilon_n$	Gamma detection efficiency, $\varepsilon_\gamma$ %	Relation, $\varepsilon_n / \varepsilon_\gamma$
Plastic (polystyrene)	30,0 %	7,1 %	4,2
KDP:Tl <sup>+</sup> (0,1 wt.% Tl)	12,4 %	0,4 %	31,0
KDP:Ce <sup>3+</sup> (0,01 wt.% Ce)	16,2 %	0,6 %	27,0

Как видно из таблицы 2, эффективность регистрации быстрых нейтронов скintилляторами KDP: Tl<sup>+</sup> и KDP: Ce<sup>3+</sup> варьируется от 12 до 16% и находится в согласии с теоретическим расчетом (таблица 1). Вместе с тем  $n/\gamma$  отношение эффективностей регистрации быстрых нейтронов и гамма-частиц для KDP:Tl и KDP:Ce скintилляторов примерно в 7 раз выше, чем у пластика. Это подтверждает высокую естественную селективную чувствительность KDP скintилляторов к быстрым нейтронам. При подходящем выборе низкоэнергетического порога для спектрометра регистрация этими скintилляторами быстрых нейтронов в смешанных радиационных полях практически не требует применения пассивной защиты от высокоэнергетических  $\gamma$ -квантов. В детекторах на основе кристаллов KDP:Tl и KDP:Ce можно достигнуть  $n/\gamma$  дискриминации вплоть до  $10^2$ , что сравнимо с применением активной защиты (по схеме антисовпадений) от комптоновских  $\gamma$ -квантов. Возможно, этого будет недостаточно для обеспечения современных стандартов [24] обнаружения делящихся и радиоактивных материалов, где требуется разделение сигналов на уровне  $10^5$ - $10^6$ . Однако сам факт такого естественного  $n/\gamma$  разделения для детектора быстрых нейтронов на основе активированных кристаллов KDP является уникальным и может быть востребован в различных приложениях.

## ВЫВОДЫ

В работе были исследованы сцинтилляционные отклики кристаллов KDP:Tl и KDP:Ce при облучении источниками быстрых нейтронов и гамма-излучения. Обнаруженная люминесценция может быть вызвана прямым возбуждением ионизирующим излучением ионов активаторов, а также (в гораздо большей степени) рекомбинационным механизмом передачи электронных возбуждений кристаллической решетки на центры свечения с участием радиационных дефектов подвижной (при комнатных температурах) водородной подрешетки. Получена теоретическая и измерена экспериментальная эффективность детектирования быстрых нейтронов на основе механизма упругого рассеяния и отдачи на легких ядрах. Эффективность регистрации быстрых нейтронов сцинтилляционными кристаллами KDP толщиной 10 мм варьируется в пределах 12-16%, что сравнимо с эффективностью регистрации для органических сцинтилляторов. Обнаружена высокая естественная селективная чувствительность кристаллов KDP при регистрации быстрых нейтронов по отношению к сопутствующему гамма-излучению. Отношение эффективностей при внутреннем  $n/\gamma$  разделении сигналов достигает величины  $\sim 30$ , тогда как для других неорганических сцинтилляторов оно обычно не превосходит  $\sim 2-3$ . Таким образом, гамма-излучение регистрируется детекторами на основе KDP-сцинтилляторов на уровне естественного фона.

Полученные результаты показывают, что новые селективно-чувствительные к быстрым нейтронам активированные кристаллы KDP:Tl и KDP:Ce существенно дополняют перечень твердотельных сцинтилляторов для детектирования нейтронов и могут быть востребованы в различных приложениях, в том числе для контроля делящихся ядерных материалов и антитеррористической безопасности.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Marion J.B., Fowler J.L. Fast Neutron Physics. Part 1: Techniques, Part 2: Experiments and Theory. - New York, 1960.
2. Harvey J.A., Hill N.W. Scintillation detectors for fast neutron physics // Nuclear Instruments and Methods. - 1979. - Vol. 162. - P. 507-530.
3. Klein H., Brooks F.D. Scintillation detectors for fast neutrons // Proc. of Sciences, Int. Workshop on Fast Neutron Detectors and Applications (FNDA 2006), University of Cape Town, South Africa, (April 3-6, 2006), Vol. PoS(FNDA2006)097. - P. 1-24.
4. Kouzes R.T., Lintereur A.T., Siciliano E.R. Progress in alternative neutron detection to address the helium-3 shortage // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A. - 2015. - Vol. A784. - P. 172-175.
5. Ryzhikov V.D., Naydenov S.V., Piven L.A., Onyshchenko G.M., Smith C.F., Pochet T. Fast neutron detectors and portal monitors based on solid-state heavy-oxide scintillators // Radiation Measurements. - 2017. - Vol. 105. - P. 17-25.
6. Beckurts K-H., Wirtz K. Neutron Physics. - Berlin: Springer-Verlag, 1964.
7. Birks J.B. The theory and practice of scintillation counting. - London: Pergamon Press, 1964.
8. Knoll G.F. Radiation detection and measurement, - 4<sup>th</sup> Ed. - Wiley, 2010.
9. Hull G., Zaitseva N., Cherepy N., Newby J. et al. New organic crystals for pulse shape discrimination // IEEE Trans. Nucl. Sci. - 2009. - Vol. 56. - P. 899-903.
10. Favalli A., Iliev M., Chung K., Hurlbut C. et al. Pulse shape discrimination properties of neutron-sensitive organic scintillators // IEEE Trans. Nucl. Sci. - 2013. - Vol. 60. - P. 1053-1056.
11. Voronov A., Salo V., Puzikov V., Tkachenko V., Vydai Yu. Potassium and ammonium dihydrogen phosphates activated with thallium: growth and luminescence and scintillation properties // Crystallography Reports. - 2006. - Vol. 51. - P. 696-701.
12. Voronov A.P., Vyday Y.T., Salo V.I., Puzikov V.M., Bondarenko S.I. Influence of thallium doping on scintillation characteristics of mixed KDP/ADP crystals // Radiation Measurements. - 2007. - Vol. 42 (4). - P. 553-556.
13. Voronov A.P., Babenko G.N., Puzikov V.M., Roshal A.D., Salo V.I. Doping of KDP single crystals with Cerium: growth and optical properties // Crystallography Reports. - 2008. - Vol. 53. - No. 4. - P. 708-712.
14. Voronov A.P., Babenko G.N., Glushkova L.V., Puzikov V.M., Roshal A.D., Salo V.I. Potassium dihydrogen phosphate doped organic complexes of rare earth elements // Inorganic Materials. - 2009. - Vol. 45. - P. 533-537.
15. Zaitseva N., Carman L. Rapid growth of KDP-type crystals. Progress in crystal growth and characterization of materials. - Pergamon, 2001. - P. 1-118.
16. Kolybayeva M., Pritula I., Salo V., Garnov S. Effect of radiation on the properties of water soluble crystals // Proc. SPIE 3244, Laser-Induced Damage in Optical Materials, 1997 (20 April 1998). - P. 130.
17. Sugimoto H., Ikeda S.J. Proton transfer in hydrogen-bonded crystalline KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> // J. Phys.: Condens. Matter. - 1996. - Vol. 8. - P. 603-618.
18. Zazubovich S., Voloshinovskii A., Stryganyuk G. Luminescence of CsCl: Tl crystal under synchrotron excitation // Physica Status Solidi. - 2002. - Vol. 233. - No. 2. - P. 238.
19. Fujita I. Optical-absorption studies on noncubic  $s^2$  centers in single crystals of KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> and RbH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> // Physical Review B. - 1994. - Vol. 49. - P. 6462-6469.
20. Ogorodnikov I., Pustovarov V. Electronic excitation energy transfer and nonstationary processes in KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>:Tl crystals // J. Exp. Theor. Phys. - 2017. - Vol. 124. - P. 592-603.
21. Ogorodnikov I., Kirm M., Pustovarov V., Cheremnykh V. Low-temperature time-resolved vacuum ultraviolet spectroscopy of self-trapped excitons in KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> crystals // Optics and Spectroscopy. - 2003. - Vol. 95. - P. 385-389.
22. Ogorodnikov I., Kirm M., Pustovarov V. Luminescence of the hydrogen bonded crystals // Radiation Measurements. - 2007. - Vol. 42. - P. 746-750.
23. The JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library), Japan Atomic Energy Agency (JAEA); <http://www.ndc.jaea.go.jp/jendl/j40/j40.html>.
24. Kouzes R.T., Ely J.R., Lintereur A.T., Stephens D.L. Neutron detector gamma insensitivity criteria, Technical report PNNL-18903. - Pacific Northwest National Laboratory, Richland, WA, USA, 2009.

PACS: 61.41.+e, 62.20.fg

## INVESTIGATION OF MECHANICAL PROPERTIES OF POLYIMIDE FILMS UNDER THE INFLUENCE OF LABORATORY-SIMULATED SPACE FACTORS

V.A. Lototskaya<sup>1\*</sup>, L.F. Yakovenko<sup>1</sup>, E.N. Aleksenko<sup>1</sup>, V.A. Velichko<sup>1</sup>, I.P. Zaritskiy<sup>1</sup>,  
V.V. Abraimov<sup>2</sup>, Wen Zhu Shao<sup>2</sup>, Liu Hai<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*B. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering of NAS of Ukraine  
Prospect Nauky, 47, Kharkov, 61103, Ukraine*

\*E-mail: [lototskaya@ilt.kharkov.ua](mailto:lototskaya@ilt.kharkov.ua), <https://orcid.org/0000-0001-8766-3154>

<sup>2</sup>*Harbin Institute of Technology*

*Harbin, the People's Republic of China*

Received June 19, 2018; revised August 9, 2018; accepted August 28, 2018

In work the mechanical properties of polyimide films analogue kapton-H (manufactures of the People's Republic of China) by thickness 75 microns are studied in conditions of uniaxial stretching at temperature 293 K after influence of space factors - a separate and joint irradiation by protons and electrons with energy  $E=160$  keV and fluence (the total flow of particles with incident on the samples)  $F=10^{16}$  cm<sup>-2</sup>. The limit of the forced elasticity, the ultimate strength, the total strain before fracture and the contributions to the total deformation related to the elastic deformation occurring in the linear stage, the total forced elastic and irreversible deformation that contribute to the overall deformation of the samples at the nonlinear stage are determined. The total forced elastic deformation consists of a highly elastic deformation, reversible at the test temperature, and delayed elastic deformation. After exposure to irradiation, an increase in the limit of the forced elasticity of the films by 5-11%, a decrease in the ultimate strength by 10-14%, and a reduction in the total deformation by 20-28% were found. The maximum change in all mechanical characteristics occurs under the influence of proton irradiation. It is established that the decrease in the total deformation of irradiated films is mainly due to a 80% reduction in the contribution of irreversible deformation. The contribution of the total forced elastic deformation of the polyimide film practically does not change after irradiation, which has important scientific and applied significance.

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

## ДОСЛІДЖЕННЯ МЕХАНІЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ ПОЛІІМІДНИХ ПЛІВОК ПІД ВПЛИВОМ ФАКТОРІВ КОСМОСУ, ЩО ІМІТОВАНІ ЛАБОРАТОРНО

В.О. Лотоцька<sup>1</sup>, Л.Ф. Яковенко<sup>1</sup>, Є.М. Алексенко<sup>1</sup>, М.І. Величко<sup>1</sup>, І.П. Зарицький<sup>1</sup>,  
В.В. Абраїмов<sup>2</sup>, Wen Zhu Shao<sup>2</sup>, Liu Hai<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Фізико-технічний інститут низьких температур ім. Б.І. Веркіна НАН України  
пр. Науки, 47, м. Харків, 61103, Україна*

<sup>2</sup>*Харбінський Політехнічний інститут  
м. Харбін, КНР*

У роботі вивчені механічні властивості поліімідних плівок типу kapton-H (виробництва КНР) завтовшки 75 мкм в умовах одноосного розтягування при температурі 293 К після дії чинників космічного простору - роздільного і спільного опромінення протонами і електронами з енергією  $E=160$ кЕВ і флюенсом (повним потоком частинок, що падають на зразки)  $10^{16}$  см<sup>-2</sup>. Визначені границя вимушеної еластичності, межа міцності, сумарна деформація до руйнування і вклади в сумарну деформацію, пов'язані з пружною деформацією, яка відбувається на лінійній стадії, повною вимушеною еластичною і незворотною деформацією, які вносять свій внесок в загальну деформацію зразків на нелінійній стадії. Повна вимушена еластична деформація складається з високоеластичної деформації, оборотної при температурі випробування, і затриманої еластичної деформації. Після впливу опромінення виявлено збільшення границі вимушеної еластичності плівок на 5-11%, зниження межі міцності на 10-14% і зменшення сумарної деформації на 20-28%. Максимальна зміна всіх механічних характеристик відбувається під впливом опромінення протонами. Встановлено, що зниження сумарної деформації опромінених плівок відбувається, в основному, за рахунок скорочення на 80% вкладу необоротної деформації. Внесок повної вимушеної еластичної деформації плівки полііміда практично не змінюється після опромінення, що має важливе наукове і прикладне значення.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** полііміди, фактори космічного простору, границя змушеної еластичності, межа міцності, деформованість

## ИССЛЕДОВАНИЕ МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ПОЛИИМИДНЫХ ПЛЕНОК ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ФАКТОРОВ КОСМОСА, ИМИТИРУЕМЫХ ЛАБОРАТОРНО

В.А. Лотоцкая<sup>1</sup>, Л.Ф. Яковенко<sup>1</sup>, Е.Н. Алексенко<sup>1</sup>, Н.И. Величко<sup>1</sup>, И.П. Зарицкий<sup>1</sup>,  
В.В. Абраимов<sup>2</sup>, Wen Zhu Shao<sup>2</sup>, Liu Hai<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Физико-технический институт низких температур им. Б.И.Веркина НАН Украины,  
пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина*

<sup>2</sup>*Харбинский Политехнический институт, г. Харбин, КНР*

В работе изучены механические свойства полиимидных пленок типа kapton-H (производства КНР) толщиной 75 мкм в условиях одноосного растяжения при температуре 293 К после воздействия факторов космического пространства - раздельного и совместного облучения протонами и электронами с энергией  $E=160$ кЭВ и флюенсом (полным потоком частиц, падающих на образцы)  $10^{16}$  см<sup>-2</sup>. Определены предел вынужденной эластичности, предел прочности, суммарная деформация до разрушения и вклады в суммарную деформацию, связанные с упругой деформацией, происходящей на линейной стадии,

© Lototskaya V.A., Yakovenko L.F., Aleksenko E.N., Velichko V.A.,

Zaritskiy I.P., Abraimov V.V., Wen Zhu Shao, Liu Hai, 2018

полной вынужденной эластической и необратимой деформацией, которые вносят свой вклад в общую деформацию образцов на нелинейной стадии. Полная вынужденная эластическая деформация состоит из высокоэластической деформации, обратимой при температуре испытания, и задержанной эластической деформации. После воздействия облучения обнаружено увеличение предела вынужденной эластичности пленок на 5-11%, снижение предела прочности на 10-14% и уменьшение суммарной деформации на 20-28%. Максимальное изменение всех механических характеристик происходит под воздействием облучения протонами. Установлено, что снижение суммарной деформации облученных пленок происходит, в основном, за счет сокращения на 80% вклада необратимой деформации. Вклад полной вынужденной эластической деформации пленки полиимида практически не изменяется после облучения, что имеет важное научное и прикладное значение.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** полиимиды, факторы космического пространства, предел вынужденной эластичности, предел прочности, деформируемость

При создании космических аппаратов (КА) нового поколения широкое применение получили полиимидные материалы (типа ПМ-А, kapton-H), благодаря уникальным физико-химическими свойствам: высокой химической, термической и радиационной стойкости, превосходным физико-механическим характеристикам [1]. Пленки указанных материалов используются в качестве: экранно-вакуумной теплоизоляции (ЭВТИ) и терморегулирующих покрытий (ТРП), обеспечивающих заданный тепловой режим КА, отражающих систем (космических зеркал), разного типа антенн КА, промежуточных (изолирующих) слоев солнечных батарей КА. Так например, при создании новейшей космической телескопа ВЭББ с диаметром основного зеркала 6,5м, для отражения потока солнечного излучения будут использованы пять слоев полиимидных пленок kapton-H толщиной 25 и 50 мкм с площадью  $\approx 900\text{м}^2$ .

В космическом пространстве на материалы и элементы космических аппаратов одновременно и поочередно воздействует целый ряд экстремальных факторов, таких, как: глубокий вакуум ( $P \approx 10^{-4}-10^{-5}$  Па), активные частицы плазмы «солнечного ветра», электромагнитное излучение Солнца (в интервале длин волн  $\lambda = 1-2500$  нм), ионизирующие излучения (потоки протонов и электронов радиационных поясов Земли в широком интервале энергий частиц  $E = 30$  кэВ - 10 МэВ), атомарный кислород (с энергией частиц  $E = 5$  эВ), продукты собственной внешней атмосферы космического аппарата, термоциклирование (в интервале температур  $T = -150^\circ\text{C} \dots +150^\circ\text{C}$ ), невесомость и другие факторы. Изучение закономерностей и специфики поведения полимерных материалов при воздействии комплекса и отдельных факторов космического пространства (ФКП) является одной из важных задач космического материаловедения.

Целью настоящей работы являлось исследование закономерностей деформации и разрушения полиимидных пленок kapton - H (производства КНР) после воздействия факторов космического пространства (ФКП) при комнатной температуре. В работе использовали метод механических испытаний - одноосное растяжение при  $T = 293\text{K}$  и скорости деформации  $7 \cdot 10^{-4} \text{с}^{-1}$ . Воздействие факторов космоса на исследуемые материалы было проведено путем отдельного и совместного облучения протонами и электронами с энергией частиц  $E = 160$  кэВ.

### МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Объектами исследования являлись образцы из термопластичной пленки ароматического полиимида – поли-4,4'-дифениленоксидпиромеллитимида - толщиной 75 мкм. Механические свойства указанной пленки (производства КНР) в исходном состоянии изучены в работе [2].

Образцы для испытания 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 осуществляли в специальных захватах. Захват состоит из ролика, вокруг которого огибается лопатка образца и двух прижимов, захватывающих ролик с лопаткой.

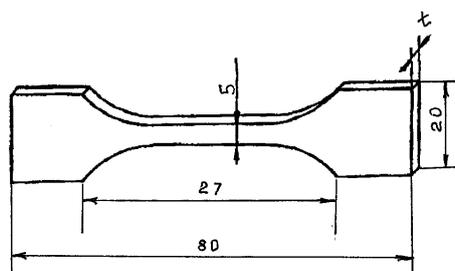


Рис. 1. Форма образца для испытаний на растяжение

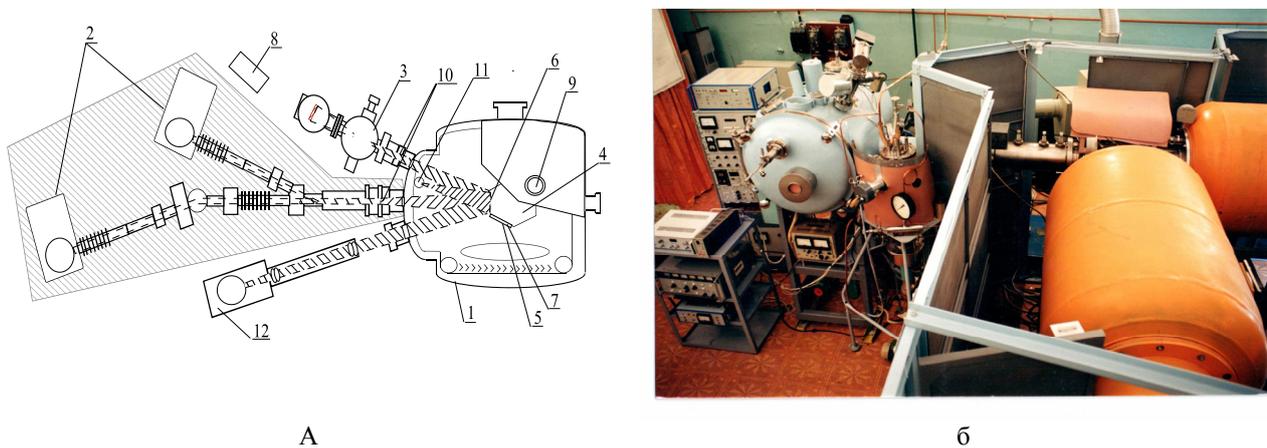
Механические свойства исходных образцов, подвергнутых воздействию ФКП, исследовали при комнатной температуре на воздухе (293 К). Деформирование образцов в условиях одноосного растяжения проводили на разрывной машине FPZ-100/1 с низкотемпературной приставкой, созданной во ФТИНТ [3], при скорости

перемещения активного штока  $V_{\text{деф}} = 0,85 \text{ мм/мин}$ , что соответствовало скорости пластической деформации материалов  $\dot{\epsilon} = 7 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$  ( $\dot{\epsilon} = V_{\text{деф}}/L_0$ , где  $L_0$  - исходная рабочая длина образца).

В процессе деформирования записывали диаграмму растяжения в координатах «нагрузка  $P$  - удлинение  $\Delta L$ », из которой определяли следующие механические характеристики пленок: условный предел вынужденной эластичности, соответствующий напряжению, при котором высокоэластическая деформация составляет 1%,  $\sigma_{\text{в}} = P_{1\%}/S_0$ ; предел прочности пленок: (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. Кроме обратимого (упругого) удлинения  $\Delta L_{\text{упр}}$ , связанного с нерелаксированным модулем упругости полимера, согласно [2] общее удлинение  $\Delta L_{\text{общ}}$  полимера при комнатной температуре содержит 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  $T_{\text{пл}}$ , т.е.  $\Delta L_{\text{общ}} = \Delta L_{\text{упр}} + \Delta L_{\text{эласт1}} + \Delta L_{\text{эласт2}} + \Delta L_{\text{необр}}$ . Вклады  $\Delta L_{\text{эласт1}}$ ,  $\Delta L_{\text{эласт2}}$  и  $\Delta L_{\text{необр}}$  определяли как в [2] на исходных образцах. Нормируя полученные значения  $\Delta L$  на величину исходной рабочей длины образца  $L_0$ , получали соответствующие значения относительной деформации.

Все указанные механические характеристики представлены далее как средние значения по результатам измерений на 6 образцах, как в исходном состоянии, так и после каждого вида облучения.

Воздействие ФКП (имитируемые лабораторно) на исследованные полиимидные пленки проводили в комплексном имитаторе факторов космоса КИФК, созданном во ФТИНТ НАН Украины (рис.2) [4].



А

Б

Рис.2. Имитатор КИФК

а – схема, б – общий вид имитатора КИФК, эксплуатируемого в ФТИНТ им. Б.И. Веркина НАН Украины

Комплексный имитатор КИФК (рис.2) состоит из следующих основных систем: вакуумной камеры (1) с системами криогенной и вакуумной откачки, ускорителя протонов и электронов (2) с совмещенными пучками частиц, источника вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) и ультрамягкого рентгеновского (УМР)-излучения (3) со специальной вакуумной камерой для исследования физико-механических свойств материалов в поле ВУФ-излучения, источника искусственного заатмосферного Солнца типа ИС-160 (12), пультов управления комплексным имитатором с системами автоматического измерения свойств материалов на базе персональных компьютеров, а также радиационной защиты персонала от рентгеновского и гамма-излучений, которое возникает при работе ускорителей электронов и протонов. Радиационная защита изготовлена из специальной рентгенозащитной резины с добавлением окислов редкоземельных материалов и включает в себя: защитное ограждение ускорителей протонов и электронов, а также радиационной защиты на поверхности вакуумной камеры (1) и остальных источниках излучения имитатора КИФК.

В криогенно-вакуумной камере имитатора КИФК одновременно имитируются 8 основных экстремальных факторов космического пространства:

1 и 2. Потоки протонов (1) и электронов (2) радиационных поясов Земли с энергией частиц  $E=30-200 \text{ кэВ}$  (площадь облучения  $S=100 \text{ см}^2$ ; ток пучков протонов и электронов  $I=0,5-50 \text{ мкА}$ ). Имитация протонов и электронов производится на совмещенных пучках частиц при их нормальном падении на материалы КА.

3. Электромагнитное излучение заатмосферного Солнца в интервале длин волн:  $\lambda = 200 - 2500 \text{ нм}$  с интенсивностью излучения  $J_c = 0,14 \div 0,28 \text{ Вт/см}^2$  и площадью облучения  $S=100 \text{ см}^2$ .

4. Вакуумное ультрафиолетовое (ВУФ) и ультрамягкое рентгеновское (УМР)- излучения Солнца в диапазоне длин волн  $\lambda=1,24 - 200 \text{ нм}$  с интенсивностью излучения  $(0,01 \div 3) \cdot 10^{-4} \text{ Вт/см}^2$  и площадью облучения  $\varnothing=120 \text{ см}^2$ . Спектр излучения ВУФ-имитатора максимально приближен к спектру излучения Солнца в указанном диапазоне длин волн.

5. Глубокий вакуум космического пространства  $P = 10^{-4} - 10^{-5}$  Па.
6. Изменение температуры материалов, элементов и систем КА (термоциклирование) в интервалах температур  $\Delta T_1 = 77 - 400$  К и  $\Delta T_2 = 4,2 - 400$  К в глубоком вакууме ( $P = 10^{-4} - 10^{-5}$  Па).
7. Чернота космического пространства:  $\varepsilon \approx 0,95 - 0,97$ .
8. Низкий коэффициент возврата частиц:  $Z_0 \rightarrow 0$ .

В настоящей работе образцы подвергались воздействию моноэнергетических потоков корпускулярного излучения со средней энергией  $E=160$ кэВ. Полный поток частиц, падающих на образцы (флюенс), составлял  $\Phi=10^{16}$  см<sup>-2</sup> (т.е. в работе проводилась имитация полета КА в течение 100лет на орбите МКС для  $H=400$ км и полета КА на геостационарной орбите  $H=36000$ км в течение 10 лет). Частицы (протоны и электроны) со средними энергиями в диапазоне  $E \approx 30-200$  кэВ имеют максимальную плотность потоков в радиационных поясах Земли. Причем для этого диапазона энергий средние пробеги протонов лежат в интервале длин  $\xi_p = 0,5-2$  мкм, а средние пробеги электронов имеют величину  $\xi_e \approx 80-100$  мкм, т.е. все падающие частицы поглощаются в поверхностных слоях материала. При указанных флюенсах поглощенные образцами дозы имеют весьма высокие значения:  $D \approx 10^{10} - 10^{11}$  рад, это может привести к существенной деградации основных физико-механических свойств материала, а в некоторых случаях – к их полному разрушению, даже в отсутствии механических напряжений.

### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 3 представлены типичные кривые «напряжение ( $\sigma$ )-деформация ( $\varepsilon$ )» исследованных образцов полиимидных пленок: исходных образцов (1), образцов, после отдельного облучения электронами (2) и протонами (3), а также образцов после совместного облучения протонами и электронами флюэнсом  $\Phi=10^{16}$  ч/см<sup>2</sup> (4). Кривые  $\sigma - \varepsilon$  образцов как в исходном состоянии, так и после облучения имеют две стадии – линейную и нелинейную.

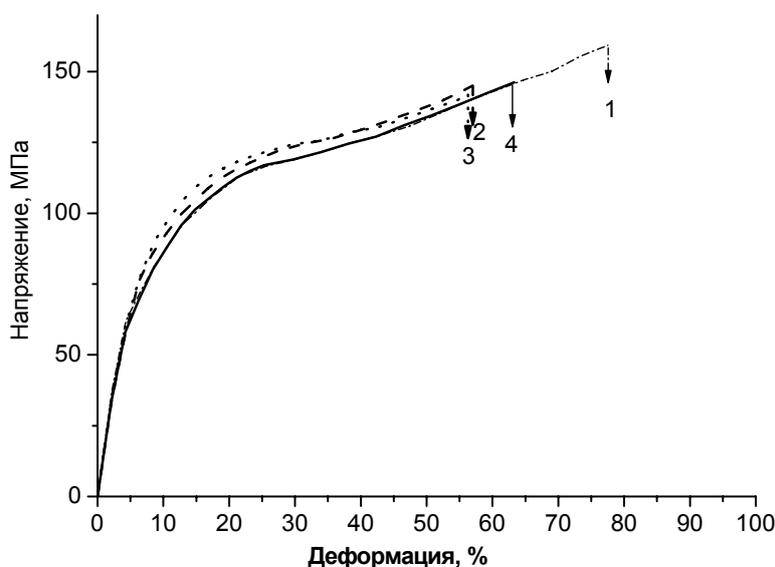


Рис.3. Типичные кривые «напряжение ( $\sigma$ )-деформация ( $\varepsilon$ )» полиимидной пленки толщиной 75 мкм  
 1 - в исходном состоянии, 2 - после облучения электронами, 3 – протонами, 4 - совместно электронами и протонами при  $T=293$  К и скорости деформации  $7 \cdot 10^{-4}$  с<sup>-1</sup>

В области упругих деформаций (т.е. при которых выполняется закон Гука:  $\sigma = E\varepsilon$ , где  $E$ -модуль Юнга материала), деформирующие напряжения имеют обратимый характер и диаграммы  $\sigma(\varepsilon)$  при нагружении и разгрузке совпадают. Если деформировать облученный образец на нелинейной стадии до напряжения вблизи предела прочности  $\sigma_p$ , то при последующей разгрузке будет наблюдаться гистерезис хода кривой  $\sigma(\varepsilon)$  и часть деформации, протекающей на нелинейной стадии будет являться обратимой высокоэластической при температуре испытания. Существуют также вклады необратимой и задержанной высокоэластической деформации, которые определялись по методике, описанной в работе [2].

Из рис.3 видно, что облучение полиимидов протонами и электронами флюэнсом  $10^{16}$  см<sup>-2</sup>, (что соответствует 10 годам полета КА на геостационарной орбите  $H=36000$ км и 100 годам полета КА на орбите МКС при  $H=400$ км) приводит к упрочнению материала, т.е. к увеличению на 5-11% деформирующих напряжений вдоль всей кривой  $\sigma(\varepsilon)$  и, соответственно, к увеличению предела вынужденной эластичности. Этот результат важен с практической точки зрения и выгодно отличает этот тип полимера от других линейных полимеров, исследовавшихся с целью их использования в конструкциях космических аппаратов. Отметим, что исследование полимеров, типа полиэтилена, фторопласта, майлара, проведенное в работах [7-10] показало, что

их облучение протонами, электронами, ВУФ-излучением и потоками заатмосферного Солнца приводило к разупрочнению материалов, т.е. к уменьшению уровня деформирующих напряжений на 40-45%. В работе [5] показано, что под влиянием протонов и электронов с энергией частиц  $E=160$  кэВ и флюенсе  $10^{16}$  см<sup>-2</sup> политетрафторэтилен (майлар) разрушался без приложения к нему внешних механических напряжений. Средние значения механических характеристик исследованных полиимидных пленок после воздействия ФКП (электронов и протонов с энергией  $E=160$  кэВ и флюенсом  $\Phi=10^{16}$  см<sup>-2</sup>) представлены на рис.4. Упрочняющий эффект на пределе вынужденной эластичности, обнаруженный авторами ранее [5] на пленках производства РФ (толщиной 40мкм) при совместном облучении протонами и электронами, в данных пленках значительно меньше. Максимальное увеличение предела вынужденной эластичности  $\sigma_v$  на 11% (в настоящих исследованиях) наблюдалось при облучении пленок полиимида протонами. Напряжение разрушения  $\sigma_p$  и суммарная деформация до разрушения  $\varepsilon_{\text{общ}}$  при всех видах воздействия уменьшается. Максимальное снижение величин  $\sigma_p$  на 14% и  $\varepsilon_{\text{общ}}$  на 28% также наблюдается при облучении одними протонами.

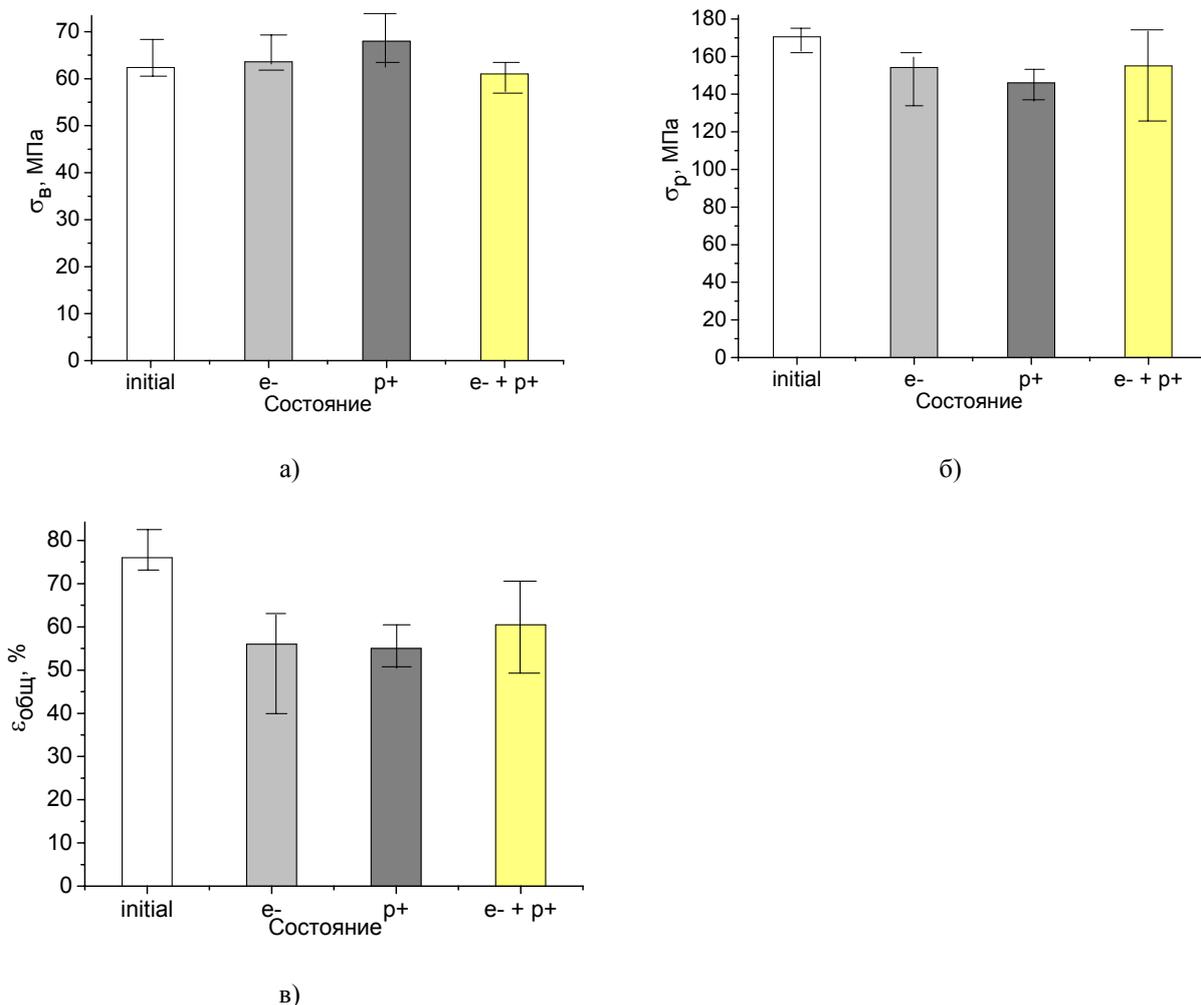


Рис. 4. Средние значения механических характеристик:

а) предел вынужденной эластичности, б) напряжение разрушения, в) суммарная деформация до разрушения образцов полиимидной пленки толщиной 75 мкм при комнатной температуре в исходном состоянии и после воздействия ФКП

На рис.5 представлены средние значения общей деформации  $\varepsilon_{\text{общ}}$  образцов, испытанных в исходном состоянии и после воздействия ФКП и отдельных вкладов в нее: вклада обратимой при температуре испытания высокоэластической деформации  $\varepsilon_{\text{эласт1}}$ , полной вынужденной эластической деформации (обратимой  $\varepsilon_{\text{эласт1}}$  + задержанной  $\varepsilon_{\text{эласт2}}$ ) и вклада необратимой деформации  $\varepsilon_{\text{необр}}$ . Максимальное снижение обнаруживает величина необратимой деформации, достигая 80% при облучении протонами. Максимальное снижение обратимой при температуре испытания высокоэластической деформации  $\varepsilon_{\text{эласт1}}$  также наблюдается при облучении протонами и достигает 30%. Снижение полной вынужденной эластической деформации (обратимой  $\varepsilon_{\text{эласт1}}$  + задержанной  $\varepsilon_{\text{эласт2}}$ ) наименьшее по сравнению другими вкладами и колеблется от 13% при облучении одними протонами до 5% при совместном облучении электронами и протонами.

Образцы пленок, облученные электронами, претерпевают слабое окрашивание(потемнение), которое релаксирует через несколько часов после облучения. Поскольку электроны имеют длину свободного пробега(~100мкм), что было больше толщины пленки (75мкм), процессы радиолитического разложения совместно с релаксацией окрашивания скорее всего свидетельствует о том, что большая часть возбужденных молекул возвращается в основное состояние за счет рассеивания энергии возбуждения и поэтому влияние электронов на механические свойства меньше, чем протонов. Результаты, приведенные на рис.6а,б,в, демонстрируют явление окрашивания (потемнения) полиимидных образцов после их совместного облучения протонами и электронами (рис.6а), а также окрашивание образцов после раздельного облучения протонами (рис.6б).

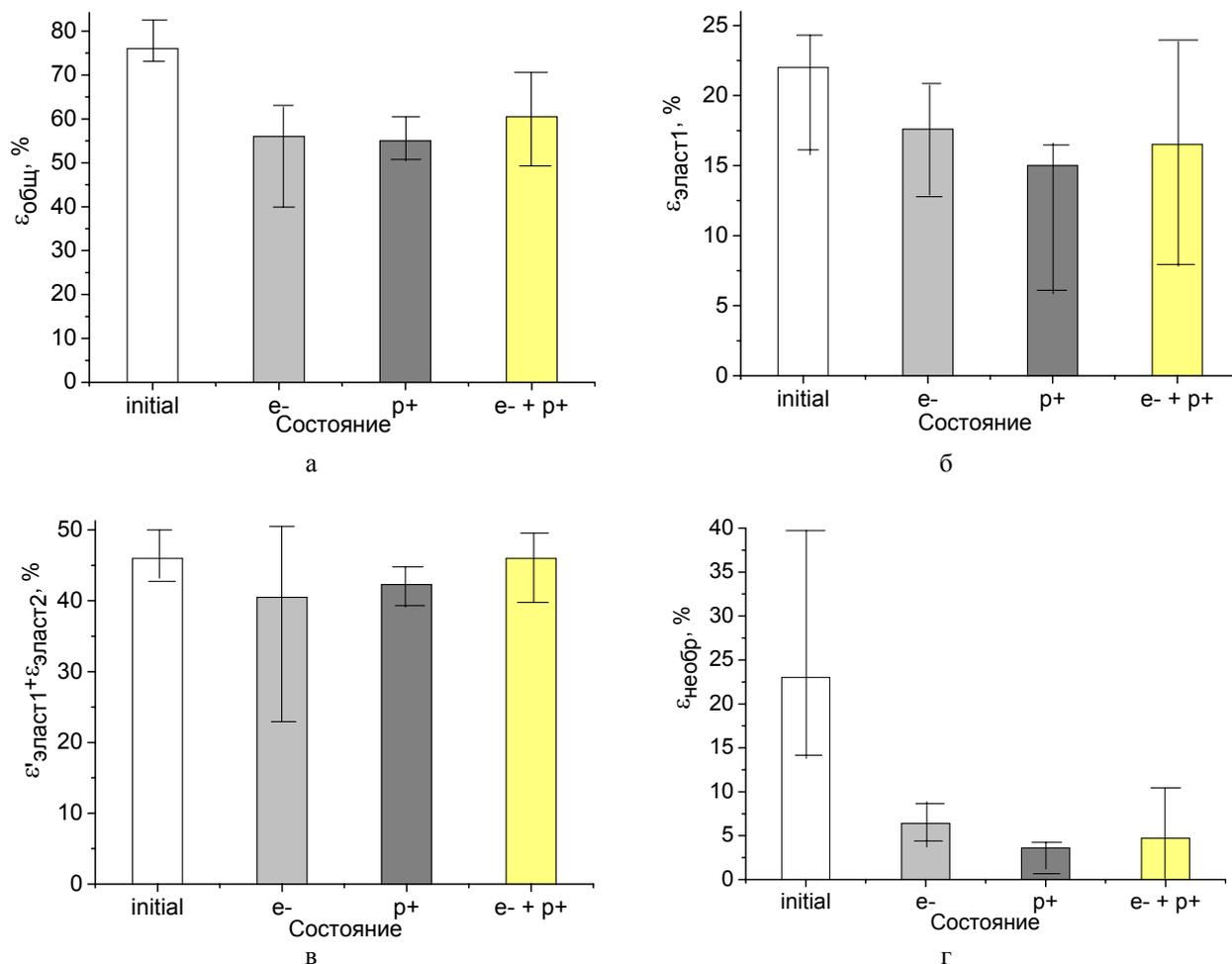


Рис.5. Средние значения суммарной деформации и ее составляющих образцов полиимидной пленки толщиной 75 мкм, деформированных при T = 293K в исходном состоянии и после воздействия ФКП  
 а – суммарная деформация до разрыва образцов  $\epsilon_{общ}$ , б - высокоэластическая обратимая деформация при температуре испытания  $\epsilon_{эласт1}$ , в - полная вынужденная эластическая деформации ( $\epsilon_{эласт1} + \epsilon_{эласт2}$ ), г - необратимая деформация  $\epsilon_{необр}$

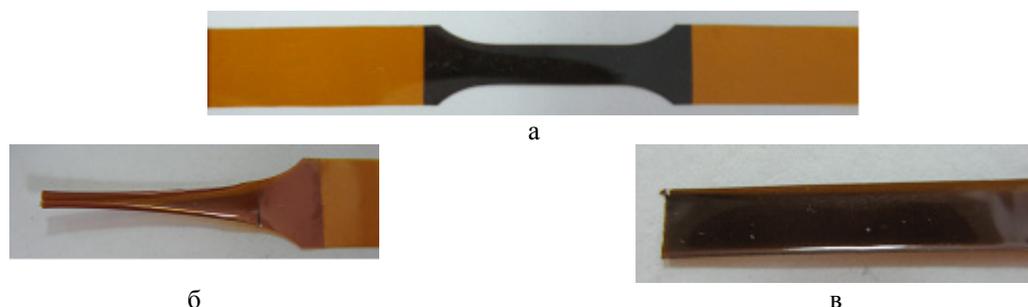


Рис.6. Внешний вид образцов

а – после совместного облучения протонами и электронами, б - после облучения протонами и деформации до разрушения, в - после облучения протонами и электронами и деформации до разрушения.

Видно, что после совместного облучения  $p^+$  и  $e^-$  (рис.6 а) образцы имели коричневую окраску, более

насыщенную, чем после отдельного облучения протонами (рис.6 б). После деформирования до разрушения образцы, прошедшие облучение протонами, скручиваются (рис. 6 б,в). Наибольшие макронапряжения возникали в образцах, облученных только протонами (рис.6б). Совместное облучение протонами и электронами существенно уменьшало макронапряжения, проявляющиеся при разрушении (рис.6в). Это согласуется с данными по изменению величин предела вынужденной эластичности  $\sigma_v$ , высокоэластической ( $\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}}$ ) (в) и необратимой деформации  $\epsilon_{\text{необр}}$  (г) в образцах после воздействия ФКП по сравнению с исходными.

Следует особенно подчеркнуть, что полученные в настоящей работе результаты хорошо согласуются с полученными ранее данными о высокой радиационной стойкости полиимидных материалов. Оказалось, что полиимиды являются радиационно устойчивыми материалами при значительных дозах облучения, соответствующих 100 эквивалентным годам пребывания КА на высоте  $H=400\text{ км}$  ( орбита МКС). Полиимидные пленки сохраняют ( в сравнении с исходными ) до 86-90% величины напряжения разрушения  $\sigma_p$ , они сохраняют до 72-80% суммарной деформации образцов  $\epsilon_{\text{общ}}$  и повышают до 5-11% запас по пределу вынужденной эластичности. В литературе [1] предлагаются следующие механизмы, приводящие к повышению радиационной стойкости различных характеристик полиимидов:

1) Облучение полиимидов сопровождается конкурирующими процессами – разрывом макроцепей и межмолекулярным сшиванием. Снижение прочности, которое связано с процессами деструкции , компенсируется ее изменением за счет структурирования;

2) На разрыв связей бензольного кольца требуются большие энергетические затраты (следует отметить, что в мономере данного полиимида содержится максимальное число ароматических циклов);

3) Коллективная система  $\pi$ -электронов ароматических циклов способствует равномерному перераспределению избыточной энергии между всеми элементами цепи, которое также приводит к повышению радиационной стойкости полимера.

Основной причиной воздействия ФКП на механические свойства полиимидных пленок является: разрыв макроцепей и межмолекулярное сшивание. После воздействия факторов космоса, упрочнение полимера на пределе вынужденной эластичности, свидетельствует о получении в результате протекания указанных конкурирующих процессов, более жестко связанной структуры полимера (в сравнении с исходной), что при дальнейшем деформировании образцов понижает степень деформируемости и прочности образцов полиимида.

Однако важно отметить, что оценка изменения после воздействия ФКП величин, составляющих суммарную деформацию до разрыва  $\epsilon_{\text{общ}}$  (рис. 6), свидетельствует о сохранении эластичности пленок : сохраняется более 87-90% вклада полной вынужденной эластической деформации, обусловленной переориентацией сегментов макромолекул. Основное уменьшение суммарной деформации происходит за счет сокращения вклада необратимой деформации, связанной с вязко-текучими процессами передвижения макромолекул в целом. Максимальное его сокращение происходит также после облучения протонами и составляет 80% от исходного значения.

## ВЫВОДЫ

1. В настоящей работе проведено исследование механических свойств полиимидных пленок типа kapton-H толщиной 75 мкм производства КНР после воздействия ФКП (потоков протонов и электронов радиационных поясов Земли) при 293 К и скорости деформации  $10^{-4} \text{ с}^{-1}$ .
2. Получена серия диаграмм «напряжение-деформация» после воздействия ФКП. Установлено, что кривые деформации имеют две стадии: линейную и нелинейную.
3. Определены характеристики механических свойств полиимидных пленок: предел вынужденной эластичности ( $\sigma_v$ ), предел прочности ( $\sigma_p$ ) и суммарная деформация до разрушения  $\epsilon_{\text{общ}}$  пленок толщиной (75 мкм). Суммарная деформация  $\epsilon_{\text{общ}}$  пленок имеет составляющие, связанные с упругой деформацией  $\epsilon_{\text{упр}}$ , происходящей на линейной стадии, вынужденной эластической ( $\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}}$ ) и необратимой деформацией  $\epsilon_{\text{необр}}$ , которые вносят свой вклад в общую деформацию образцов на нелинейной стадии. Полная вынужденная эластическая деформация состоит из высокоэластической деформации  $\epsilon_{\text{эласт1}}$ , обратимой при температуре испытания, и задержанной эластической деформации  $\epsilon_{\text{эласт2}}$ .
4. Установлено, что облучение одними протонами, а также совместное воздействие протонами и электронами (энергией 160 кэВ и флюенсом частиц  $10^{16} \text{ ч/см}^2$ ) пленок полиимида толщиной 75 мкм, приводит в процессе их деформации при 293К к упрочнению материала , т.е. к увеличению предела вынужденной эластичности  $\sigma_v$  (на 5-11%), к снижению предела прочности  $\sigma_p$  ( на 10-14 %) и уменьшению суммарной степени деформации  $\epsilon_{\text{общ}}$  (на 20-28 %). Максимальное влияние на все механические характеристики полиимидных пленок оказывает облучение одними протонами.
5. Экспериментально обнаружено, что вклад общей вынужденной эластической деформации ( $\epsilon_{\text{эласт1}} + \epsilon_{\text{эласт2}}$ ) облученной пленки полиимида сохраняется практически на том же уровне, что и в исходном состоянии. Наибольшее снижение (на 80%) демонстрирует величина вклада необратимой деформации полиимидных пленок.
6. Сохранение высокого уровня предела вынужденной эластичности, а также высокой деформируемости пленок

полиимида после значительных доз облучения корпускулярными частицами (потоком протонов и электронов), имеет важное научное и прикладное значение при создании космических аппаратов новых поколений с временами жизни 5-20 лет.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bessonov M.I., Koton M.M., Kudryavtsev V.V., Layus I.A. Polyimidy – klass termostoykikh polymerov [Polyimides – class of heat-resistant polymers].-L.: Nauka, 1984.-328 p. (in Russian).
2. Lototskaya V.A., Yakovenko L.F., Aleksenko E.N., Abraimov V.V., Wen Zhu Shao Low temperature deformation and strength of polyimide films due to thickness and deformation speed //East.Eur.J.Phys.-2017.-Vol.4. - No2. - P.44-52.
3. Volikova L.M., Chernetskiy V.K. Nizkotemperaturnaya pristavka k razryvnoy mashine 1231Y10 [Low temperature unit to tensile testing mashine] sb. Prikladnoe kriogennoe i vakuumnoe materialovedenie [Applied cryogenic and vacuum material science] pod red. Lavrentev F.F. -Kyiv: Nauk. dumka, 1991 – P. 137-143 (in Russian).
4. Abraimov V.V., Negoda A.A., Zavalishin A.P., Kolybaev L.K. Kompleksnaya imitatsiya faktorov kosmicheskogo prostranstva [Complex imitation of space factors ]// Kosmichna nauka i tehnologiya [Space Science and Technology].-1995.- Vol. 1. – No 2-6. - P.76-80 (in Russian).
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-mechanicheskikh 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., Zaritskiy I.P., Salteviskiy G.I. Vliyanie faktorov kosmosa (nizkikh temperatur, zaatmosfernogo solntsa, potokov protonov I elektronov) na mehanicheskie svoystva nekotorykh polimerov [Influence of space factors (low temperatures, the exoatmospheric sun, streams of protons and electrons) on mechanical properties of some polymers] //Abstr. 55 Internat. Conf. “Aktual’nye problemy prochnosti” [Actual strength problems], 9-13 april 2014.- Kharkov, Ukraine.- P. 158 (in Russian).
7. Abraimov V.V., Bocharov K.Sh., Danovskiy V.V., Udovenko V.F. Vliyanie VUF – izlucheniya na deformatsionnye i prochnostnye svoystva polietilena v intervale temperatur 200-350 K [Influence of VUV-radiation on deformation and strength properties of polythene in the temperature interval 200-350 K] // sb. Radatsionnaya stoykost’ organicheskikh materialov v usloviyah kosmosa [Radioresistance of organic materials under space conditions].- M.,NIITEHIM, 1989.- Vyp.8.- P.21-25 (in Russian).
8. Verkin B.I., Udovenko V.F. Abraimov V.V., Bocharov K.Sh. Vliyanie elektermagnitnogo izlucheniya v oblasti 0,01-25 mkm na mehanicheskie svoystva nekotorykh polimernykh materialov [Influence of electromagnetic radiation in the field of 0,01-25 microns on mechanical properties of some polymeric materials] // sb.Kosmichna nauka i tehnika [Space science and technology ].- Kyiv: Nauk. dumka, 1988.-Vyp.3.-P.54-57 (in Russian).
9. Abraimov V.V., Bocharov K.Sh., Galuza A.I., Udovenko V.F. Vliyanie elektermagnitnogo izlucheniya v oblasti 5-2500 nm na mehanicheskie I opticheskie svoystva nekotorykh polimernykh materialov [Influence of electromagnetic radiation in the field of 5-2500 nanometers on mechanical and optical properties of some polymeric materials] // sb. Radatsionnaya stoykost’ organicheskikh materialov v usloviyah kosmosa [Radioresistance of organic materials under space conditions].- M.,NIITEHIM,1989.- Vyp.10.-P.23-30 (in Russian).
10. Abraimov V.V., Bocharov K.Sh., Danovskiy V.V., Udovenko V.F. Issledovanie vozdeystviya elektromagnitnogo izlucheniya v oblasti 5-2300 nm na fiziko-mechanicheskie svoystva polimernykh materialov [Investigation of physical-mechanical properties of polymeric materials under influence of electromagnetic radiation in the field of 5-2500 nanometers] // sb. Prikladnoe kriogennoe i vakuumnoe materialovedenie [Applied cryogenic and vacuum material science] pod red. Lavrentev F.F. -Kyiv: Nauk. dumka, 1991 – P. 103-109 (in Russian).

PACS: 81.65.Ps

**ELECTROLYTIC PLASMA POLISHING OF COPPER****O.V. Mihal, O.V. Moroz, R.I. Starovoytov, I.V. Buriak***V. N. Karazin Kharkiv National University**Svobody Sq. 4, 61022, Kharkiv, Ukraine**E-mail: [oleksii.mihal@gmail.com](mailto:oleksii.mihal@gmail.com), <https://orcid.org/0000-0002-3512-6477>*

Received July 12, 2018; revised August 28, 2018; accepted September 6, 2018

Modern industrial technological processes require special preparation of metal surfaces. Currently, there are different methods of surface treatment of metal. Among them, it is possible to distinguish the method of electrolytic-plasma polishing (PEP – plasma electrolytic polishing) is distinguished as an innovative, due to its ecological properties, low energy consumption per unit of surface to be processed, high speed of modification and the possibility of processing parts of complex geometric shape. The main advantage of this method of surface modification is its ecological purity, which makes it possible to apply this technology to the food and pharmaceutical industry. Despite the large number of journal publications, electrolytic plasma polishing remains an innovative surface modification method that needs to be thoroughly studied in order to improve understanding of physical processes and optimize the surface modification process. The process of obtaining electrolytic plasma polishing of copper products in a solution of ammonium sulfate with the addition of sulfuric acid is considered in the paper. The experiment was divided into two stages. At first, the samples were treated for 600 seconds each for the obtain of temperature characteristics, with a strong correlation between the load current and the electrolyte temperature was observed. Dependence of the current on the temperature of the electrolyte showed four different modes of treatment. One of the modes showed the best results. During the second series of experiments, the processing of objects from 30 to 600 seconds. As a result of the conducted studies, optimal regimes for polishing copper objects were obtained.

**KEYWORDS:** electrolytic-plasma polishing, metal working, surface relief; modification of the surface; temperature of electrolyte

**ЕЛЕКТРОЛІТНО-ПЛАЗМОВЕ ПОЛІРУВАННЯ МІДІ****О.В. Мігаль, О.В. Мороз, Р.І. Старовойтов, І.В. Буряк***Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна**61022, Харків, м. Свободи, 4*

Сучасні промислові технологічні процеси вимагають спеціальної підготовки металевих поверхонь. В даний час існують різні методи обробки поверхні металу. Серед них можна виділити метод електролітно-плазмового полірування (РЕР – plasma electrolytic polishing), як інноваційний, завдяки своїм екологічним властивостям, низьким енергозатратами на одиницю обробленої поверхні, високою швидкістю модифікації та можливістю обробки деталей складної геометричної форми. Основною перевагою даного методу модифікації поверхні є його екологічна чистота, що дозволяє застосовувати дану технологію для харчової та фармацевтичної промисловості. Незважаючи на велику кількість публікацій у журналах, електролітно-плазмово полірування залишається інноваційним методом модифікації поверхні, яку необхідно ретельно вивчати, щоб поліпшити розуміння фізичних процесів та оптимізувати процес модифікації поверхні. У даній статті розглянуто процес електролітно-плазмового полірування мідних виробів у розчині сульфату амонію з додаванням сірчаної кислоти. Експеримент був розділений на два етапи. Спочатку зразки оброблялися протягом 600 секунд кожен для зняття температурних характеристик, при цьому спостерігалася сильна кореляція між струмом навантаження і температурою електроліту. Залежність струму від температури електроліту показала чотири різні режими обробки. Один з режимів показав найкращі результати. Під час другого етапу експерименту проводилася послідовна обробка об'єктів від 30 до 600 секунд. У результаті проведених досліджень були отримані оптимальні режими полірування мідних об'єктів.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** електролітно-плазмово полірування, металообробка, рельєф поверхні; модифікація поверхні; температура електроліту

**ЭЛЕКТРОЛИТНО-ПЛАЗМЕННАЯ ПОЛИРОВКА МЕДИ****А.В. Мигаль, О.В. Мороз, Р.И. Старовойтов, И.В. Буряк***Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина**61022, г. Харьков, пл. Свободы, 4*

Современные промышленные технологические процессы требуют специальной подготовки металлических поверхностей. В настоящее время существуют различные методы обработки поверхности металла. Среди них можно выделить метод электролитно-плазменной полировки (РЕР – plasma electrolytic polishing), как инновационный, благодаря своим экологическим свойствам, низким энергозатратам на единицу обрабатываемой поверхности, высокую скорость модификации и возможность обработки деталей сложной геометрической формы. Основным преимуществом данного метода модификации поверхности является его экологическая чистота, что позволяет применять данную технологию для пищевой и фармацевтической промышленности. Несмотря на большое количество публикаций в журналах, электролитно-плазменной полировки остается инновационным методом модификации поверхности, которую необходимо тщательно изучать, чтобы улучшить понимание физических процессов и оптимизировать процесс модификации поверхности. В данной статье рассмотрен процесс электролитно-плазменной полировки медных изделий в растворе сульфата аммония с добавлением серной кислоты. Эксперимент был разделен на два этапа. Сначала образцы обрабатывались в течение 600 секунд каждый для снятия температурных характеристик, при этом наблюдалась сильная корреляция между током нагрузки и температуры электролита. Зависимость тока от температуры электролита показала четыре разных режима обработки. Один из режимов показал наилучшие результаты. Во время второй серии эксперимента проводилась последовательная обработка объектов от 30 до 600 секунд. В результате проведенных исследований были получены оптимальные режимы

полировки медных объектов.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** электролитно-плазменное полирование, металлообработка, рельеф поверхности; модификация поверхности; температура электролита

Мідь є відомим матеріалом з широким спектром використання. Вироби з міді завдяки високій електропровідності незамінні в електротехніці, а висока теплопровідність зробила мідь найкращим матеріалом для ефективних теплообмінників та інших елементів конструкцій в хімічній, фармацевтичній, харчовій промисловості. При цьому мідь є пластичним металом, що порівняно легко оброблюється. Але для деяких виробів необхідно вимогою є висока якість поверхні міді [1]. Зазвичай мала шорсткість поверхні забезпечується поліруванням, але для такої операції висока пластичність матеріалу є швидше перешкодою. При механічному поліруванні міді відбувається проникнення частинок абразиву в поверхню, що оброблюється [2], при цьому порушуються експлуатаційні характеристики виробу. Одним з методів отримання якісної поверхні з заданою шорсткістю є метод електролітно-плазмової обробки [3, 4]. Незважаючи на те, що цей метод є відомим досить давно, він залишається актуальним і сьогодні все більше застосовується для фінішної обробки поверхні металів і сплавів [5-8]. Цьому способу обробки притаманне використання нетоксичних електролітів, що робить його привабливим для застосування при обробці виробів для фармацевтичної та харчової промисловості.

Мета роботи – оптимізація режиму обробки міді в процесі електролітно-плазмового полірування.

### ЭКСПЕРИМЕНТ ТА ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ

Дослідження динаміки процесу електролітно-плазмового полірування проводилися на установці, що зібрана за класичним компонуванням (рис. 1).

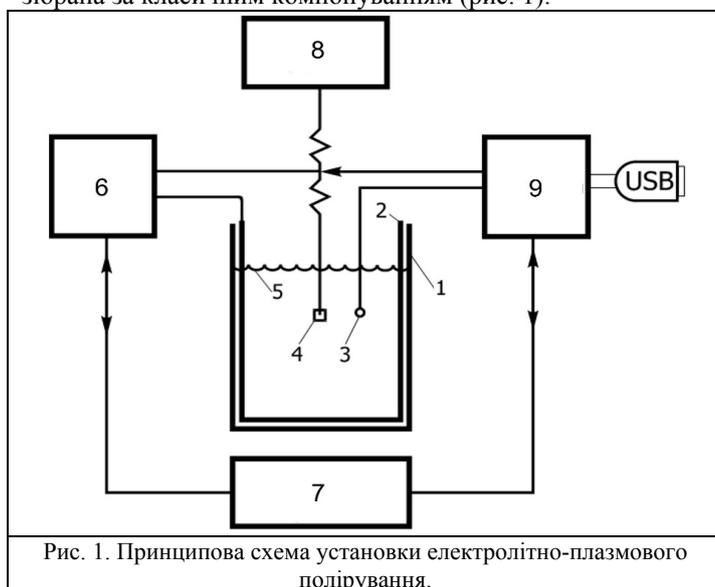


Рис. 1. Принципова схема установки електролітно-плазмового полірування.

Установка складається з робочої камери об'ємом  $0.6 \text{ м}^3$  (1); катода (2), датчика температури електроліту (3); утримувача об'єктів (4); електроліту (5); джерела живлення (6); системи управління (7); пристрою занурення (8); системи збирання і передачі даних (9). Катод виготовлений із нержавіючої сталі AISI 304 і покриває всю внутрішню поверхню вертикальних стінок бака. Його площа становить  $0.3 \text{ м}^2$ . Джерелом живлення постійного струму є трансформаторна трифазна система, зібрана за схемою Ларіонова з керованим мостом [9]. Джерело живлення забезпечує різницю потенціалів у  $280 \text{ В}$  і максимальний струм  $120 \text{ А}$ . Його вихідний опір становить  $0.18 \text{ Ом}$ . В установці передбачено блокування живлення за струмом, на рівні  $100 \text{ А}$ . Пристрій переміщення забезпечує занурення об'єкта в електроліт на задану оператором глибину з постійною швидкістю

$5 \text{ мм/с}$ . Точність позиціонування - не гірше  $1 \text{ мм}$ . Система збирання та обробки даних вимірює струм навантаження, напругу джерела живлення, температуру електроліту. Збирання і передача даних проводяться зі швидкістю  $20$  вимірювань в секунду. Система забезпечує обмін даними між установкою та керуючим комп'ютером. Відносна похибка вимірювань за струмом і напругою не перевищує  $0.5 \%$ , за температурою –  $1 \%$ . Система управління аналізує інформацію з системи збирання та обробки даних, отримує від комп'ютера команди керування процесом і забезпечує роботу всієї установки відповідно до заданої програми.

Як об'єкти дослідження використовувалися зразки розміром  $75 \times 25 \times 2 \text{ мм}^3$ , які були виготовлені з листової електротехнічної міді марки М2. Розмір зразків був обраний з міркувань мінімізації крайових ефектів на стан поверхні при електролітно-плазмовій обробці. Поверхня об'єктів містила сліди природної патини, незначні механічні пошкодження, які утворилися під час транспортування та зберігання мідних листів. Розподіл ушкоджень, їх характер і присутність забруднень на поверхні були рівномірними, отже, попередній стан поверхні об'єктів перед електролітно-плазмовою обробкою можна вважати ідентичним. Перед зануренням в електроліт об'єкти не піддавалися попередній обробці. У всіх експериментах зразки занурювалися на глибину  $25 \text{ мм}$ .

Електролітом в експериментах був водний розчин сульфату амонію з додаванням сірчаної кислоти. Вміст сульфату амонію в першому розчині становив  $4 \%$ , сірчаної кислоти  $1 \%$ . У другому розчині концентрація компонентів становила  $3 \%$  і  $0.5 \%$  відповідно. Концентрації компонентів указані в масових відсотках. За попередніми експериментами, в яких варіювалися концентрації компонентів, були визначені найбільш оптимальні з точки зору процесу електролітно-плазмового полірування параметри розчину. Таким виявився перший розчин.

У процесі електролітно-плазмової обробки відбувається нагрівання електроліту. У зв'язку з цим дослідження проводилися в кілька серій, у кожній серії використовували п'ять об'єктів. Початкова температура електроліту в кожній серії відповідала кімнатній, у нашому випадку це було 22 °С. Експеримент у кожній серії відбувався так: перший об'єкт закріплювали на тримачі та занурювали в електроліт, після чого починали процес полірування, що тривав 600 с. Протягом усього процесу проводився безперервний запис струму навантаження, напруги на об'єкті та температури електроліту, по закінченню встановленого терміну обробки відключали напругу, і об'єкт автоматично виймали з електроліту. Після заміни об'єкту процес повторювали. Таким чином, кожен наступний зразок у серії занурювався в електроліт за більшої температури. Це надало можливість дослідити залежність струму навантаження від початкової температури електроліту. Характерні залежності зміни температури електроліту від часу для однієї серії з п'яти зразків представлені на рис. 2, електролітом був перший розчин.

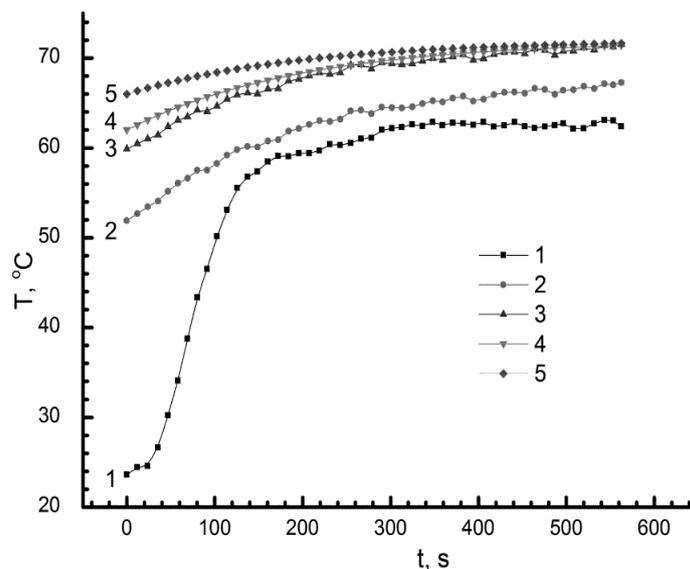


Рис. 2. Характерні залежності зміни температури електроліту від часу для однієї серії з п'яти об'єктів.

Отримані дані свідчать, що температура електроліту безперервно підвищується, наближаючись до деякого максимального значення. У всіх випадках характер зміни температури був однаковим. Максимальна температура електроліту для наших умов становила  $(72 \pm 1)$  °С.

Завдяки конструкції джерела живлення, протягом всього часу обробки напруга на зразку була однаковою і становила 280 В. Струм навантаження при цьому змінювався за складним законом. Залежність струму навантаження від часу для першого зразка в серії представлена на рис. 3.

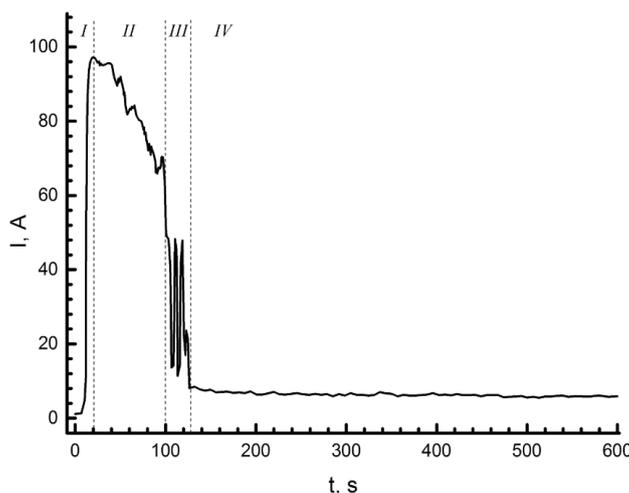


Рис. 3. Залежність струму навантаження від часу обробки для об'єкта, який занурюється в електроліт при початковій температурі  $T_s$  22 °С.

На залежності струму від часу можна виділити кілька областей, на рис. 3 вони позначені римськими цифрами. Так область I відповідає зануренню об'єкта в електроліт. У другій області відбувається нагрівання зразка в електроліті. При цьому спостерігаємо виділення газу на поверхні зразка, що свідчить про відбування процесу електролізу. З нагріванням об'єкту та електроліту зменшується струм. У третій області відбувається

перехід від електрохімічної обробки до електролітно-плазмової. У цей період температура зразка і електроліту не забезпечують формування стабільної парогазової оболонки, це підтверджується сильними коливаннями струму. У четвертій області температура об'єкта підвищується то настільки, що навкруги нього формується стабільна парогазова оболонка. Протікання струму в ланцюзі забезпечується пробоем парогазової оболонки з формуванням газового розряду постійного струму. Анодом газового розряду є виріб, що оброблюється, а катодом – поверхня рідини. Робочим тілом (газом) для розряду є парогазова оболонка, що відокремлює електроліт від поверхні об'єкта. З підвищенням початкової температури електроліту час існування другої і третьої області скорочуються, при цьому максимальні струми для кожної області зменшуються (рис. 4).

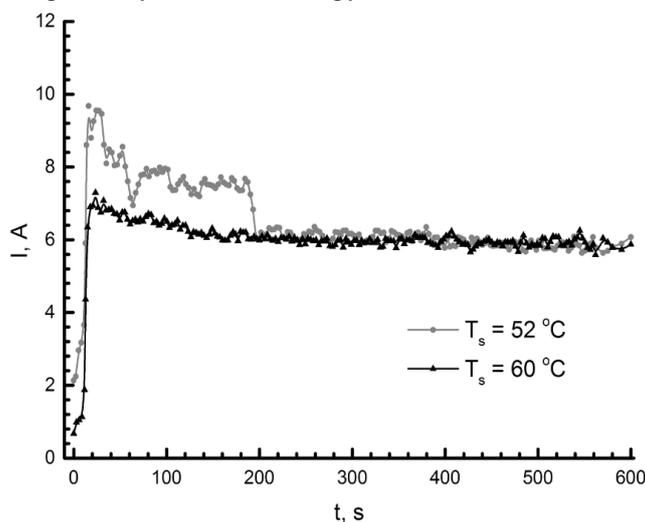


Рис. 4. Залежності струму навантаження від часу обробки для об'єктів, який занурюється в електроліт при початкових температурах  $T_s$  52 °C і 60 °C.

На рис. 4 представлені залежності струму навантаження від часу для випадків, коли зразок занурювався в електроліт з початковою температурою  $T_s$  52 і 60 °C. Це відповідає другому і третьому об'єкту в серії. Залежності для четвертого і п'ятого об'єктів не показані, оскільки вони майже збігаються з залежністю для третього об'єкта та тільки захаращують рисунок. Простежується кореляція між струмом навантаження та температурою електроліту. Як видно з кореляційного аналізу, починаючи з 55 °C, взаємний зв'язок між струмом навантаження і температурою електроліту є сильним і має зворотний характер. Це справедливо для всіх експериментів усіх серій з мідними зразками в електроліті (склад якого наводили вище).

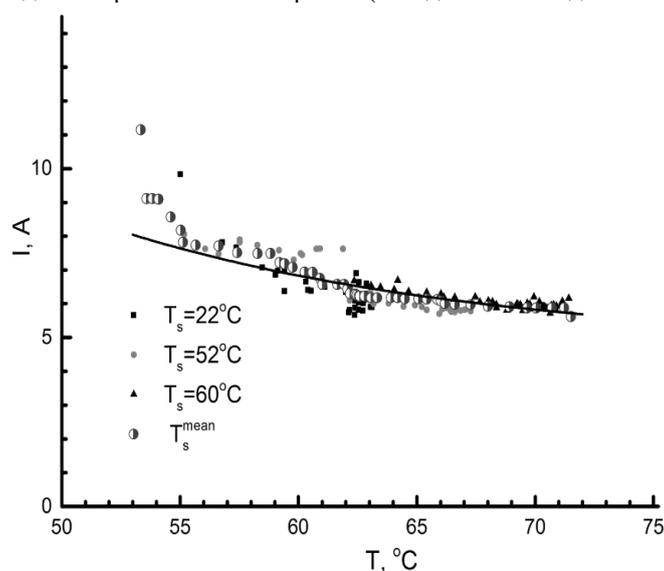


Рис. 5. Залежності струму навантаження від температури електроліту для випадків занурення об'єктів в електроліт з початковими температурами  $T_s$  22, 52 і 60 °C,  $T_s^{\text{mean}}$  – усереднене значення за всіма серіями, суцільна лінія – апроксимуюча крива.

Залежності струму навантаження від температури електроліту наведені на рис. 5. На цьому рисунку вказані значення для струму навантаження для випадків занурення об'єктів в електроліт з початковими температурами 22, 52 і 60 °C, усереднене значення за всіма серіями ( $T_s^{\text{mean}}$ ) та апроксимуюча крива.

Експерименти свідчать, що рельєф поверхні після обробки зразків протягом 600 с не залежить від

початкової температури електроліту. Для визначення оптимальних умов полірування виробів із міді проводилась обробка об'єктів із послідовним збільшенням тривалості на 30 с. Початкова температура розчину становила 60 °С. Фотографії ділянки поверхні представлені на рис. 6.

Після перших 30 с обробки (рис. 6а) поверхня зразка не відрізнялася від вихідної. При цьому процес обробки містить в собі дві області, позначені на рис. 3 як I і II. Це області, у яких відбувається прогрівання зразка, і тільки починає формуватися парогазова оболонка. При обробці поверхні зразка понад 60 с (рис. 6б) помітне притуплення гострих країв на поверхні, патина залишається майже не пошкодженою. За 60 с другого циклу процес обробки проходить вже три області, що позначені на рис. 3 як I, II і III.

Електроліт достатньо прогривається, щоб періодично формувалася суцільна парогазова оболонка та виникали умови газового розряду в ній (що побічно підтверджується сильними коливаннями струму). У третьому випадку, коли зразок оброблявся 90 с (рис. 6с), патина зникла повністю, поверхня об'єкта набула металевого блиску. На графіку залежності струму від тривалості обробки наявні всі області, зазначені на рис. 3.

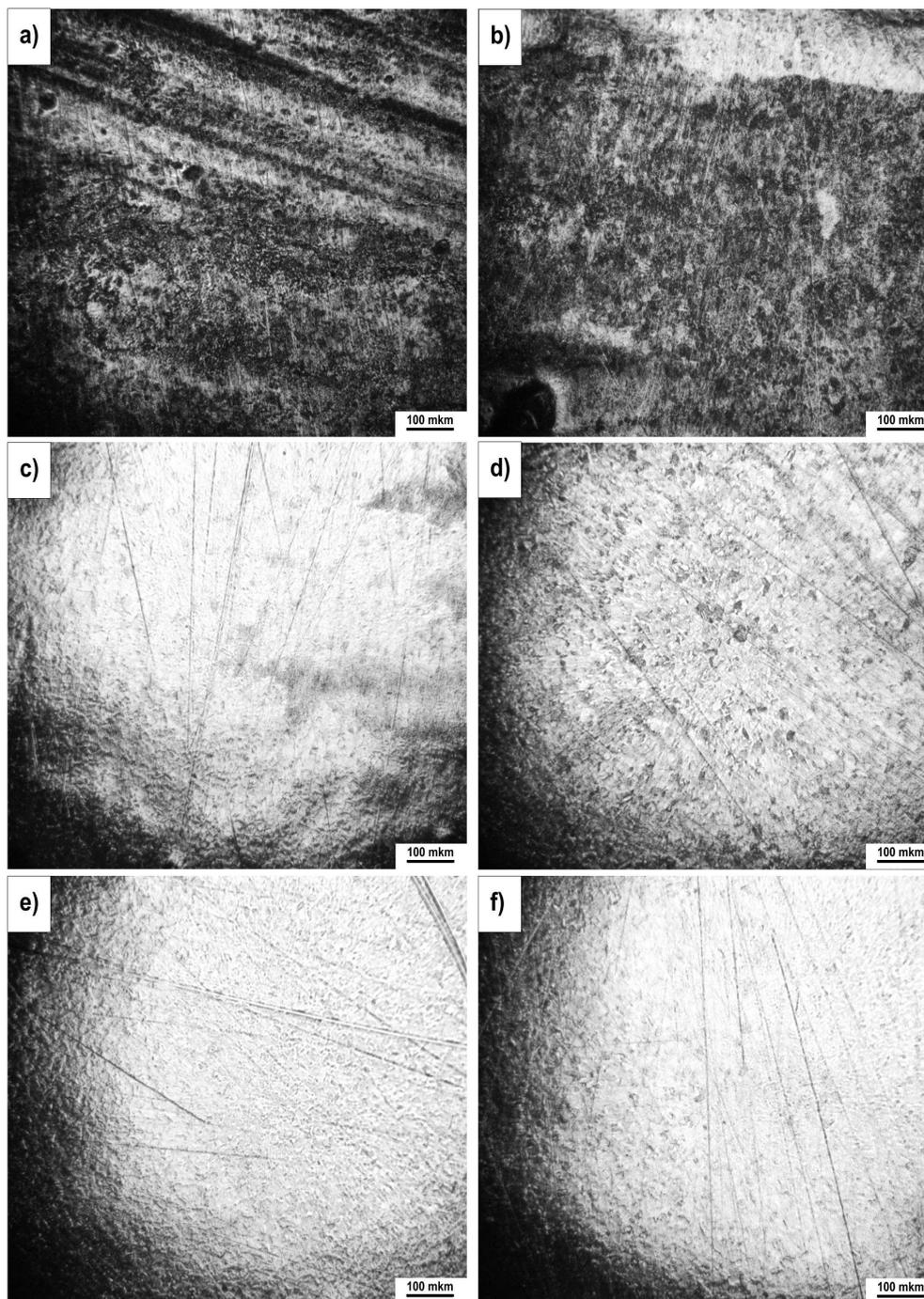


Рис. 6. Мікроструктура ділянок поверхні мідного об'єкта при послідовній обробці, тривалість кожної обробки 30 с, початкова температура електроліту  $T_s$  становила 60 °С.

Обробка протягом 120 с призводить до видалення приповерхневого шару і виявлення границь зерен матеріалу (рис. 6d). Обробка протягом 150 с призвела до згладжування країв зерен і відновлення блиску зразка (рис. 6e). Подальше збільшення часу обробки не привело до вагомих покращень якості поверхні (рис. 6f).

Таким чином, можна зробити висновок, що полірування об'єктів відбувалася за умов, які реалізуються в області IV (рис. 3).

### ВИСНОВКИ

1. Мідні вироби можуть бути відполіровані в електроліті, що містить 4 % сульфату амонію та 1 % сірчаної кислоти (масові %).
2. Зменшення концентрації зазначених компонентів нижче 3 % і 0.5 % відповідно не є доцільним.
3. Процес полірування є можливим тільки за умови формування суцільної стійкою парогазової оболонки навколо виробу.
4. Основні процеси при полірування відбуваються на поверхні виробу в плазмі газового розряду.
5. Тривалість обробки після переходу від електролізної стадії до стадії газового розряду в парогазовій оболонці може становити 60-90 с, при цьому основні параметри шорсткості поверхні  $R_a$  і  $R_z$  [10] зменшуються в середньому в 3-5 разів порівняно з початковими значеннями.

Спираючись на отримані результати, було здійснено полірування мідних виробів, які є елементами ректифікаційної колони для виробництва ефірних масел. Зовнішній вигляд виробів до і після обробки представлений на рис. 7.

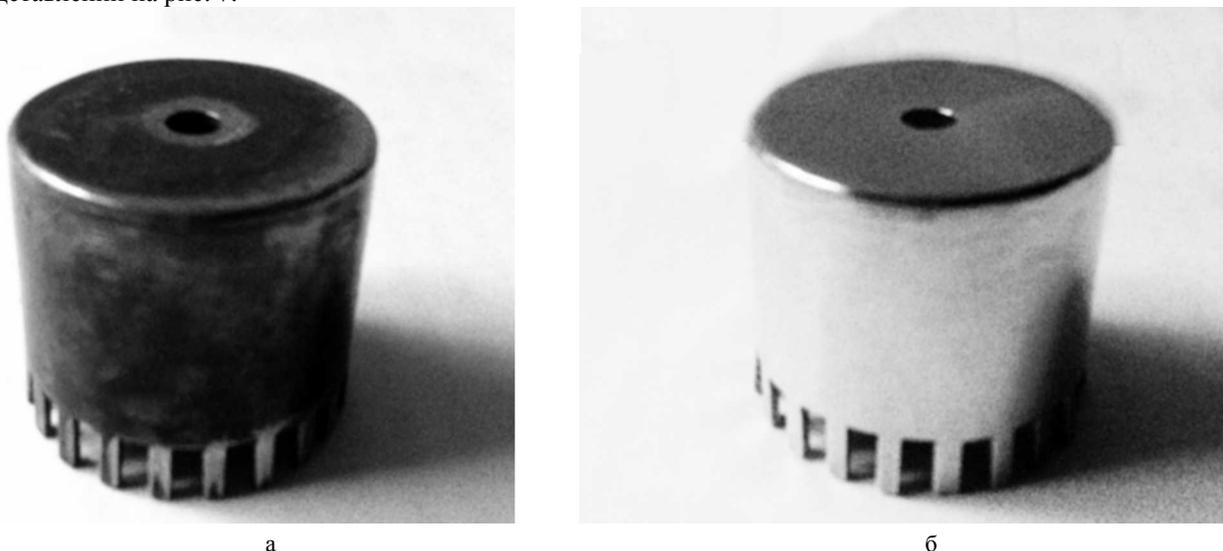


Рис. 7. Елементи ректифікаційної колони

а) - до електролітно-плазмового обробки і б) - після електролітно-плазмового обробки

Спочатку поверхню виробів містила оксидні та інші відкладення, поверхня перед поліруванням попередньо не обробляють. Повний час електролітно-плазмового полірування цих виробів в електроліті, який мав склад: 4% сульфату амонію і 1% сірчаної кислоти, становило 150 с, початкова температура електроліту – 60°C. Електролітно-плазмова полірування цих виробів показала високий результат.

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Sung Chul Cha, Ali Erdemir. Coating Technology for Vehicle Applications. – Cham: Springer International Publishing, 2015. – 240 p.
2. Garber M.I. Dekorativnoeshlifovanie i polirovanie, 2-e, dop. i pererabot. ed [Decorative grinding and polishing]. – Moskva: Mashinostroyenie, 1964. - P.192. (In Russian)
3. Yerokhin A.L., Nie X., Leyland A., Matthews A., Dowe S.J. Plasma electrolysis for surface engineering // Surface and Coatings Technology. – 1999. – No. 122. - P. 73-93.
4. Pogrebniak A.D., Tiurin Iu.N., Boiko A.G., Zhadkevich M.L., Kalyshkanov M.K., Ruzimov Sh.M., Elektrolitno-plazmennaii obrabotka i nanesenepokrytii na metally i splavy [Electrolyte-plasma processing and coating on metals and alloys] // Uspekhi fiz. Met. – 2005. – Vol. 6. – P. 273-344.
5. Gupta P., Tenhundfeld G., Daigleand E.O., Ryabkov D., Electrolyticplasmatechnology: Science and engineering —Anoverview // Surface&Coatings Technology. – 2007. – No. 201. – P. 8746-8760.
6. Parfenov E.V., Yerokhin A., Nevyantseva R.R., Gorbakov M.V., Liangand C.-J., Matthews A., Towards Smart Electrolytic Plasma Technologies: An Overview of Methodological Approaches to Process Modelling // Surface&Coatings Technology. – 2015.
7. Ushomirskaiia L.A., Gerasimov A.S. Tekhnologicheskies vozmozhnjsti primeneniia struinogo techeniia elektrolita pri elektrolitno-plazmennom polirovanii [Technological possibilities of application of a jet stream of electrolyte at electrolytic

- plasma polishing] // *Metalloobrabotka*. – 2015. – No. 4. – P. 25-30.
8. Nestler K., Böttger-Hiller F., Adamitzki W., Glowa G., Zeidlerand H., Schubert A. Plasma Electrolytic Polishing – an Overview of Applied Technologies and Current Challenges to Extend the Polishable Material Range // *Procedia CIRP*. – 2016. – No. 42. - P. 503 – 507.
  9. Rashid M. H. *Power electronics handbook*, Elseviered., Ed., Oxford, UK: Elsevier, 2011. – 1409 p.
  10. BS EN ISO 4287:2000, Geometrical product specification (GPS). Surface texture. Profile method. Terms, definitions and surface texture parameters.

PACS: 75.50.-y, 61.80.-x, 71.20.Eh

## SM-CO BASED MAGNETIC SYSTEM FOR 10 MEV TECHNOLOGICAL ELECTRON ACCELERATOR LU-10M

V.A. Bovda, A.M. Bovda\*, I.S. Guk, S.G. Kononenko, V.N. Lyashchenko, A.O. Mytsykov,  
L.V. Onischenko

*NSC "Kharkiv Institute of Physics and Technology" NASU*

*Kharkiv, 61108, st. Akamemicheskaya 1, Ukraine*

\*E-mail: [bovda@kipt.kharkov.ua](mailto:bovda@kipt.kharkov.ua), <https://orcid.org/0000-0002-1684-1475>

Received 31 May 2018; revised 3 August 2018; accepted 17 September 2018

Rare-earth permanent magnets are widely used in the accelerators of charged particles. However, the magnetic performance under irradiation remains a key issue for the most high energy applications such as accelerators with the energy up to 10 MeV. The aim of the work was to assess radiation and magnetic stability of Sm-Co and Nd-Fe-B permanent magnets under the direct electron irradiation with the energy of 10 MeV and bremsstrahlung. Sm-Co and Nd-Fe-B permanent magnets were produced by powder metallurgy method including PLP for the latter. The absorbed dose imposed by electron beam was 16 Grad (the total flux of electron per 1 cm<sup>2</sup> was 1.4x10<sup>17</sup>) and 160 Grad. The radiation activity of both Nd-Fe-B and Sm-Co magnets was within the acceptable limits after the irradiation. This makes rare-earth magnetic materials suitable for such applications. In order to avoid overheating during electron irradiation, magnets were cooled with the water (T=38 °C). In order to estimate the changes in magnetic flux, the integral of the 3D interpolation normal component of magnetic flux was used. Calculated S parameter measured in arbitrary units was chosen as integrated z-component of magnetic flux. It was shown that magnetic flux of Nd-Fe-B magnets became 0.92 and 0.717 of initial values for 16 Grad and 160 Grad correspondingly, but the magnetic flux of Sm-Co magnets had no change to the same absorbed doses. Thus, Sm-Co magnets were chosen for simulating and designing magnetic system for electron beam analysis of a technological accelerator with energy up to 10 MeV. The distance between the poles of the magnet was 25.25 mm. The highest magnetic field inside the magnetic system was 0.3110 T. The effective distance was 33.53 mm. The measured parameters of the magnetic system based on Sm-Co magnets agreed with the simulation experiment. Magnetic system can also be used to adjust the accelerator in the energy range up to 10 MeV.

**KEY WORDS:** Nd-Fe-B, Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>, permanent magnet, electron accelerator, magnetic field

### АНАЛІЗУЮЧИЙ МАГНІТ ДЛЯ ТЕХНОЛОГІЧНОГО ПРИСКОРЮВАЧА ЕЛЕКТРОНІВ ЛУ-10М

В.О. Бовда, О.М. Бовда, І.С. Гук, С.Г. Кононенко, В.М. Лященко, А.О. Мициков, Л.В. Оніщенко

*Національний Науковий Центр «Харківський фізико-технічний інститут»*

*61108, Харків, Академічна, 1*

Основною проблемою при використанні магнітів з рідкісноземельних матеріалів в прискорювальних технологіях є зміна магнітних властивостей матеріалу під дією випромінювання. Особливо актуальна ця задача для потужних технологічних прискорювачів електронів з енергією до 10 МеВ. Для вибору найбільш стійкого матеріалу були проведені дослідження радіаційної стійкості зразків магнітів з Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> і Nd-Fe-B сплаву. Постійні магніти типу Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> і Nd-Fe-B були виготовлені методом порошкової металургії з використанням PLP процесу при виробництві останніх. Магнітні зразки піддавалися прямому впливові електронного пучка з енергією 10 МеВ і впливові гальмівного випромінювання цього пучка. Поглинена доза від електронів для зразків складала 16 Град (загальний потік електронів, що потрапив на 1 см<sup>2</sup> зразка, дорівнює 1,4x10<sup>17</sup>) і 160 Град. Активність зразків після опромінення змінювалась у межах допустимих меж. Цей факт значно спрощує використання рідкісноземельних магнітних матеріалів у готових виробках прискорювачів. Активність зразків після опромінення змінювалась в межах припустимих норм. Цей факт істотно спрощує використання магнітних матеріалів у готових виробках. У процесі опромінення магніти охолоджувалися водою з температурою 38°C для запобігання перегріву. Для оцінки зміни магнітного поля, що утворюється навколо зразка, використано інтеграл інтерпольованої нормалі до поверхні зразка складової магнітного поля S по області інтерполявання даних в умовних одиницях. Для зразків з Nd-Fe-B сплаву магнітний потік навколо зразка зменшився і становив 0,92 і 0,717 початкового значення для зазначених доз опромінення. Магнітне поле навколо зразків з Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> сплаву не змінилося в межах точності вимірів для тих же доз опромінення. На основі зразків з Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> сплаву розмірами 30x24x12 мм було проведено моделювання і конструювання магніту для аналізу пучка електронів технологічного прискорювача на енергію до 10 МеВ. Найбільша величина поля в медіанній площині магніту становила 0,3110 Тл. Відстань між полюсами магніту дорівнює 25,25 мм. Ефективна довжина магніту – 33,53 мм. Виміряні параметри поля магніту задовольняють закладеним при розробці величинам. Магніт може бути використано для налагодження прискорювача в діапазоні енергій до 10 МеВ.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** Nd-Fe-B, Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>, постійні магніти, прискорювач електронів, поле магніту

### АНАЛИЗИРУЮЩИЙ МАГНИТ ДЛЯ ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО УСКОРИТЕЛЯ ЭЛЕКТРОНОВ ЛУ-10М

В.А. Бовда, А.М. Бовда, И.С. Гук, С.Г. Кононенко, В.Н. Лященко, А.О. Мыцыков, Л.В. Онищенко

*Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт»*

*61108, Харьков, Академическая, 1*

Основной проблемой при использовании магнитов из редкоземельных материалов в ускорительных технологиях является изменение магнитных свойств материала под действием излучения. Особенно актуальна эта задача для мощных технологических ускорителей электронов с энергией до 10 МэВ. Для выбора наиболее стойкого материала были проведены

исследования радиационной стойкости образцов магнитов из  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  и Nd-Fe-B сплава. Постоянные магниты типа  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  и Nd-Fe-B были изготовлены методом порошковой технологии с использованием PLP процесса в производстве последних. Магнитные образцы подвергались прямому воздействию электронного пучка с энергией 10 МэВ и воздействию тормозного излучения этого пучка. Поглощённая доза от электронов для образцов составляла 16 Град (общий поток электронов, попавший на  $1 \text{ см}^2$  образца, был равен  $1,4 \times 10^{17}$ ) и 160 Град. Активность образцов после облучения изменилась в пределах допустимых норм. Этот факт существенно упрощает использование редкоземельных магнитных материалов в готовых изделиях ускорителей. В процессе облучения магниты охлаждались водой с температурой  $38^\circ\text{C}$  для избежания перегрева.

Для оценки изменения величины поля, создаваемого вокруг образца, использовался интеграл интерполированной нормальной к поверхности образца составляющей магнитного поля  $S$  по области интерполяции данных в относительных единицах. Для образцов из Nd-Fe-B сплава магнитный поток вокруг образца уменьшился и составил 0,92 и 0,717 от начального значения для указанных доз облучения. Магнитное поле вокруг образцов из  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  сплава не изменилось в пределах точности измерений для тех же доз. На основе образцов из  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  сплава размерами  $30 \times 24 \times 12$  мм было проведено моделирование и конструирование магнита для анализа пучка электронов технологического ускорителя на энергию до 10 МэВ. Наибольшее значение поля в медианной плоскости магнита равно 0,3110 Тл. Расстояние между полюсами магнита равно 25,25 мм. Эффективная длина магнита – 33,53 мм. Измеренные параметры поля магнита удовлетворяют заданным при разработке величинам. Магнит также может быть использован для настройки ускорителя в диапазоне энергий до 10 МэВ.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** Nd-Fe-B,  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , постоянные магниты, ускоритель электронов, поле магнита

Использование магнитов на основе сплавов редкоземельных элементов позволяет создавать дипольные магниты для широкого класса ускорителей. Это медицинские и технологические линейные ускорители, микротроны, линейные коллайдеры [1-5]. Создание каждого такого устройства связано с необходимостью учёта параметров ускорителей и особенностей их эксплуатации. Линейный ускоритель ЛУ-10 [6] в ННЦ ХФТИ много лет используется для технологической радиационной обработки материалов и изделий электронным пучком с энергией около 10 МэВ. Сейчас проводится модернизация всех систем ускорителя. Предполагаемые параметры пучка этого ускорителя [7] после модернизации систем представлены ниже.

Основные параметры пучка ускорителя ЛУ-10М:

Ток пучка, А – 0,389

Энергия в максимуме, МэВ – 9,44

Энергетический спектр (99 % част.), % – 51

Энергетический спектр на половине высоты, % – 0,48

Диаметр (99 % част.), мм – 6,8

Среднеквадратичный радиус, мм – 1,5

Среднеквадратичный нормализованный эмиттанс, мм мрад – 13

На основе этих параметров были выбраны схемы каналов вывода пучка на ускорителе [8]. Эти параметры были использованы при выборе основных требований к магниту для измерения энергии пучка ускорителя [9]. Согласно выводам этой работы, конструкция магнита должна обеспечивать получение поля величиной около 0,3 Тл в зазоре 2,5 см.

Целью этой работы являлось исследование радиационной стойкости и выбор магнитного материала для использования в магните. На основе полученных результатов разработана конструкция магнита и проведены исследования характеристик поля магнита.

### ВЫБОР МАГНИТНОГО МАТЕРИАЛА

Одной из главных особенностей использования постоянных магнитов на технологических ускорителях электронов является наличие сильного радиационного фона. Поэтому при выборе магнитного материала необходимо руководствоваться требованием сохранения магнитных свойств при больших дозах облучения электронным пучком и тормозным излучением этого пучка. Имеющиеся в литературе сведения о радиационной стойкости материалов из Sm-Co и Nd-Fe-B сплава [10-23] под действием электронов с энергиями от 8 ГэВ до 10 МэВ и гамма квантов не позволяют достаточно однозначно выбрать материал для магнита. В связи с этим были проведены экспериментальные исследования изменения магнитного поля образцов магнитов из этих сплавов при прямом облучении электронным пучком с энергией 10 МэВ и тормозным излучением этого пучка [24,25].

Магниты изготавливались методами порошковой металлургии [26]. В серии измерений были использованы образцы магнитов, предварительно намагниченных в импульсном магнитном поле 3,5 Тл. Геометрические размеры магнитов –  $30 \times 24 \times 12$  мм. Поверхность образцов из Nd-Fe-B для предотвращения коррозии была покрыта слоем никеля толщиной 0,02 мм.

Образцы облучались электронным пучком линейного технологического ускорителя КУТ-1 [27] с энергией 10 МэВ. Ось ускорителя располагалась вертикально, пучок выводится сверху вниз. Развернутый магнитом с изменяемым полем пучок электронов выводился из ускорителя в воздух через титановую фольгу. Образцы ориентировались таким образом, что в процессе облучения электроны падали на южный полюс магнита размером  $30 \times 24$  мм. Плотность потока электронов в пределах размеров образца не изменялась больше, чем на 10%. В процессе облучения образцы охлаждались водой с температурой не более  $40^\circ\text{C}$ .

В измерениях использовались по 4 образца магнитов, изготовленных из Sm-Co и Nd-Fe-B сплава.

Образцы №1, №2 облучались непрерывно в течение 20 часов. Электронный пучок падал прямо на поверхность образца №1. Поглощённая доза от электронов для образца №1 составляла 16 Град (общий поток электронов, попавший на 1 см<sup>2</sup> образца, был равен  $1,4 \times 10^{17}$ ). Образец №2 облучался одновременно с образцом №1, но располагался вне электронного пучка на расстоянии 40 мм от него. Образец №3 облучался сеансами длительностью по 20 часов с перерывами 24 часа. Суммарная поглощённая доза для этого образца составила 160 Град. Образец №4 не подвергался воздействию облучению и служил опорным для магнитных и радиационных измерений.

Измерения для образцов из Nd-Fe-B сплава указывают на появление в результате реакции  $^{148}\text{Nd}(\gamma, n)^{147}\text{Nd}$ , порог которой равен 7,3 МэВ, небольшого количества нестабильного изотопа  $^{147}\text{Nd}$ , с периодом полураспада 10,98 дней. Для образцов из Sm-Co сплава спектр характерен для изотопа  $^{153}\text{Sm}$ , образованного в результате реакции  $^{154}\text{Sm}(\gamma, n)^{153}\text{Sm}$ , идущей под действием тормозного излучения электронов. Время жизни этого изотопа равно 46,284 часа. После облучения активность образцов магнитов изменяется незначительно и не ограничивает возможности нормальной работы с изделиями, в которых эти магниты используются.

### ИЗМЕРЕНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ ВОКРУГ ОБРАЗЦОВ

Для измерений распределения магнитного поля вокруг образцов использовалась линейка из семи датчиков Холла, закреплённых в массивной медной матрице для выравнивания температуры датчиков. Расстояние между датчиками в матрице изменялось от 6,48 до 7,034 мм. Измерялась нормальная по отношению к поверхности образца составляющая поля. Относительная погрешность измерений поля датчиками была не хуже 0,01%.

Образцы передвигались параллельно поверхности матрицы на расстоянии, равном 3,05 мм. Расстояние между точками измерения вдоль движения магнита изменялось от 3 до 5 мм. Величина перемещения измерялась с точностью 1 микрон. Начальная точка измерения для всех образцов фиксировалась с помощью специального упора. Поле для всех образцов измерялось как со стороны южного, так и со стороны северного полюса магнита (более подробная информация о методике измерений содержится в работе [24]).

По измеренным точкам была проведена трёхмерная квадратичная интерполяция полученных данных между точками измерения. Размер области, в которой проводилась интерполяция данных, задавался расстоянием между крайними датчиками матрицы, а вдоль движения образца - областью сканирования, точно задаваемой системой определения координат образца. На рис. 1 представлены результаты такой интерполяции для измерений, выполненных для образца № 1 из Nd-Fe-B сплава до облучения.

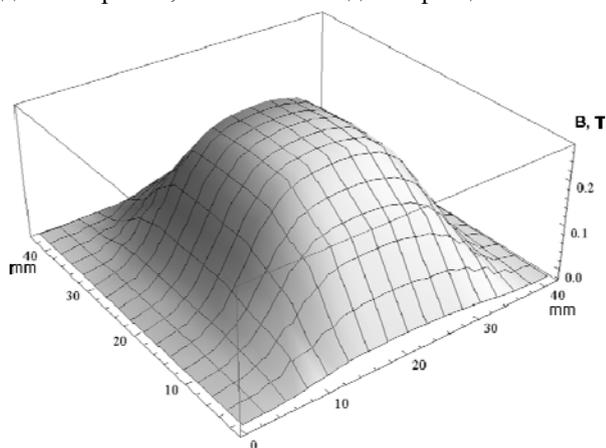


Рис. 1. Распределение поля до облучения образца №1.

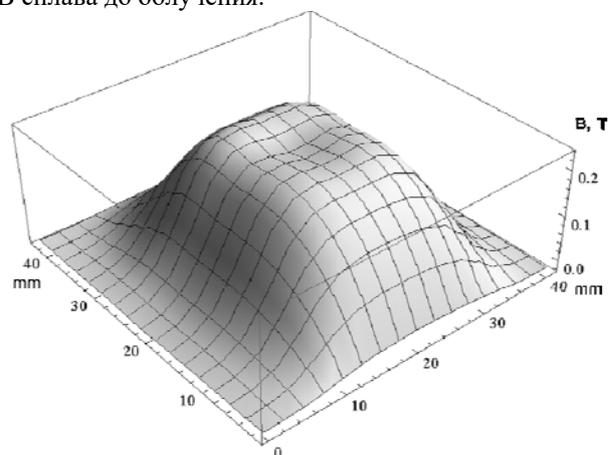


Рис. 2. Распределение поля после облучения образца №1. Поглощённая доза составляла 16 Град.

Для оценки изменения величины поля, создаваемого вокруг образца, использовался интеграл интерполированной нормальной к поверхности образца составляющей магнитного поля  $S$  по области интерполяции данных в относительных единицах. Проведенные исследования точности повторения этой меры для одного и того же образца, связанной с привязкой к границам образца измерительной системы, дают повторяемость на уровне 0,5 %.

Величина этого интеграла для поля, измеренного со стороны северного полюса использованных в исследовании образцов Nd-Fe-B сплава до начала облучения, приведена ниже.

$$S_1=175,763; S_2=179,556; S_3=176,357; S_4=175,452$$

Эти величины совпадают с данными, полученными для аналогичных измерений поля со стороны южного полюса этих образцов в пределах точности измерений.

Данные по распределению поля со стороны северного полюса, полученные после облучения образца №1 электронным пучком, представлены на рис. 2. Величина  $S_1$  при этом изменилась до значения 162,356.

Распределение поля со стороны южного полюса этого образца после облучения представлено на рис. 3.

Величина  $S_1$  для этих данных равна -160,2.

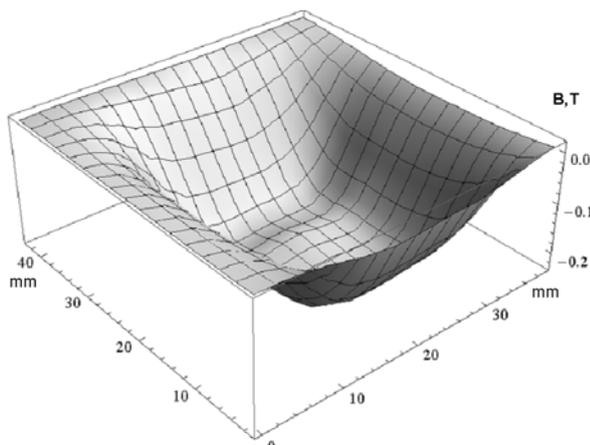


Рис. 3. Распределение поля после облучения образца №1 со стороны южного полюса. Поглощённая доза составляла 16 Град.

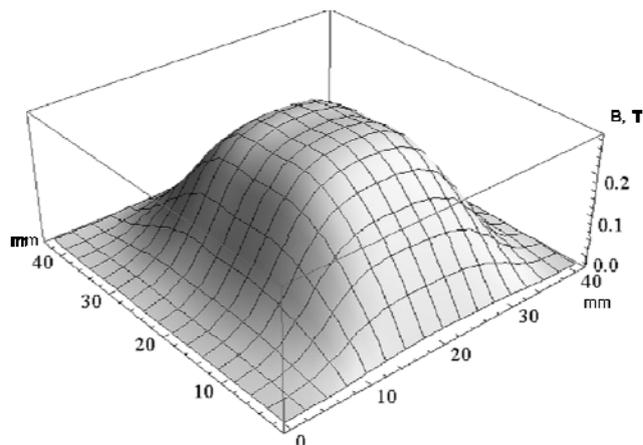


Рис. 4. Распределение поля со стороны северного полюса после облучения образца №2.

Как можно видеть из рис.2 и рис.3, после облучения как распределение поля со стороны северного и южного полюсов магнита, так и величина интеграла поля с обеих сторон в пределах точности измерений совпадают.

Распределение поля после облучения образца №2 тормозным излучением (рис.4) не отличается от первоначального, а величина интеграла  $S_2=178,526$  также практически не изменилась.

Наибольшие изменения распределения поля вокруг магнита наблюдались после облучения образца №3 (рис.5), величина  $S_3$  для него уменьшилась до значения 126,556. Однако при этом необходимо заметить, что интеграл  $S$  поля после облучения не изменился пропорционально изменению величины поглощенной дозы.

Для контрольного образца измерения распределения поля после окончания цикла измерений на облучаемых образцах показали совпадение с распределениями, полученными до облучения.

Аналогичные измерения были проведены для образцов из Sm-Co сплава. Величина интеграла поля с южного полюса для образца №1 равна -151,94; для №2 -149,007; для №3 -152,326; №4 -152,519. Величины интеграла поля с северного полюса для всех этих образцов в пределах точности измерений совпадают с приведенными выше для южного полюса.

Распределение поля со стороны северного полюса вокруг образца №1 до облучения представлено на рис. 6.

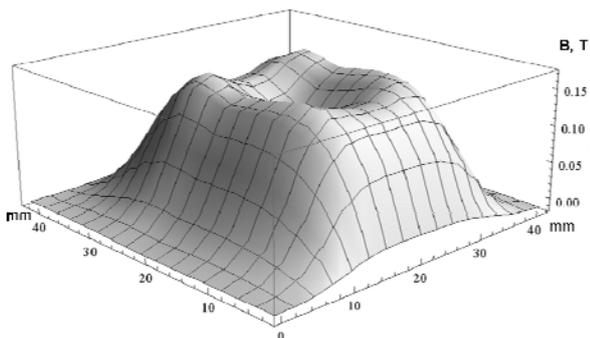


Рис. 5. Распределение поля магнита №3 после облучения. Поглощённая доза составляла 160 Град.

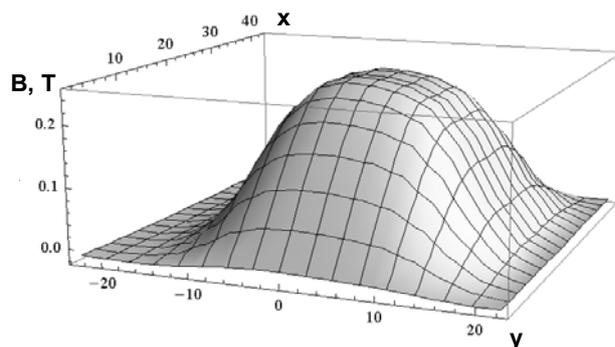


Рис. 6. Распределение поля магнита №1 до облучения. Северный полюс.

Распределение поля со стороны южного полюса вокруг образца №1 до облучения представлено на рис. 7.

Распределение поля со стороны южного полюса вокруг образца №1 после облучения представлено на рис.8. Оно совпадает с распределением поля этого образца до облучения.

Доза облучения для образца №3 в 160 Град не изменила первоначального распределения поля вокруг этого магнита. Интегралы поля после облучения равны для образца №2 – 148,397 и -149,727, для образца №3 – 149,714 и -150,065 для северного и южного полюсов соответственно.

Распределения поля вокруг образцов №2 и №3 после облучения симметричны относительно осей образцов и практически совпадают с распределениями до облучения.

Интеграл для магнита №4 после окончания измерений равен 152,496 и -155,135.

Таким образом, проведенные исследования показали преимущество использования в магните образцов из

Sm-Co сплава по сравнению с образцами из Nd-Fe-B сплава, поскольку их магнитные свойства не меняются под воздействием прямого облучения электронным пучком и тормозным излучением этого пучка.

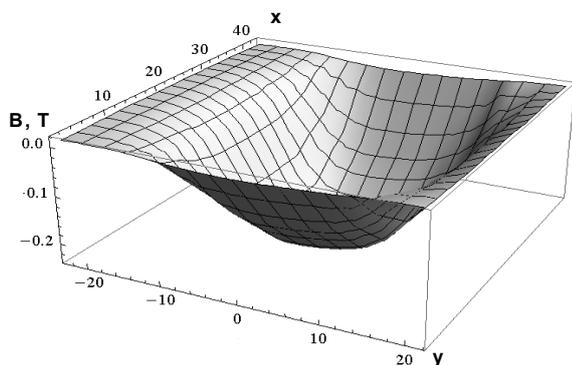


Рис. 7. Распределение поля магнита №1 до облучения.

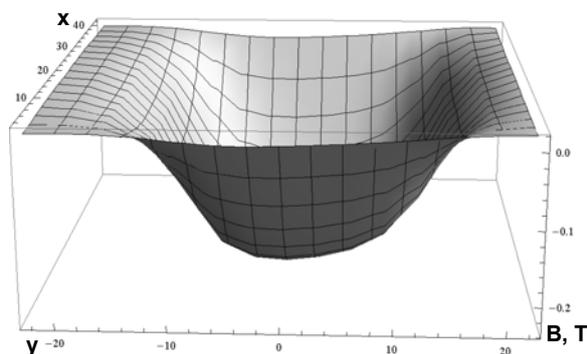


Рис. 8. Распределение поля магнита №1 после облучения.  
Поглощённая доза составляла 16 Град.

Кроме того, магниты из  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  сплава имеют лучшие характеристики в тех случаях, когда в условиях, приближенных к критическим, изделие должно оставаться стабильным. Такие условия могут часто возникать при использовании магнитов на технологических ускорителях электронов. В случае работы при высоких температурах и в агрессивных условиях, изделия из  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  сплава имеют определённые преимущества перед устройствами, изготовленными из Nd-Fe-B сплава. Температура Кюри  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  сплава равна  $825^\circ\text{C}$ . Максимальная рабочая температура самариевых магнитов достигает  $350$  градусов Цельсия. Температура Кюри для магнитов из сплава Nd-Fe-B равна  $312^\circ\text{C}$ , поэтому в условиях реальных экспериментов рабочие температуры для этого сплава не превышают  $180^\circ\text{C}$ .

Температурная стабильность магнитов изготовленных из Nd-Fe-B сплава меньше, чем у магнитов, изготовленных из Sm-Co сплава – их температурный коэффициент магнитной индукции изменяется от  $0,07$  до  $0,13$  ( $\% / ^\circ\text{C}$ ) в противовес  $-0,035$  ( $\% / ^\circ\text{C}$ ) у Sm-Co.

Кроме того, магниты из самариевого сплава меньше подвержены коррозии, чем неодимовые магниты, и обычно не требуют покрытия.

Полученные выше результаты позволили провести окончательный выбор на использование Sm-Co сплава в разработке магнита для ускорителя.

### МАГНИТ ДЛЯ УСКОРИТЕЛЯ ЛУ-10М

Образцы постоянных магнитов, изготовленных из Sm-Co сплава, размером  $30 \times 24 \times 12$  мм были использованы для оценки величины поля, которое может быть получено в дипольном магните. Магниты располагались в пространстве на расстоянии  $25$  мм. Максимальное значение поля, измеренное в медианной плоскости такого магнита, было близким к величине  $0,3$  Тл. Эта величина поля была использована при моделировании движения пучка на выходе ускорителя. Результаты моделирования позволили сформулировать окончательные требования к конструкции магнита.

На рис. 9 представлен образец магнита, конструкция которого была разработана и изготовлена на основе проведенного моделирования.

Внешние размеры магнитопровода –  $90 \times 73 \times 24$  мм. Он изготовлен из магнитомягкой стали Ст3. Точность изготовления и привязки элементов магнита –  $5$  микрон. Магнитные образцы из Sm-Co сплава крепятся к балкам при помощи алюминиевых зажимов. Верхняя балка магнита съёмная. Это позволяет легко монтировать и демонтировать магнит на выходном фланце ускорителя при процедуре измерения или подстройки энергии ускорителя. Конструкция магнита позволяет использовать его для развёртки пучка как в горизонтальной плоскости, так и в вертикальной. Было проведено измерение распределения поля в магните с помощью описанной в предыдущем разделе работы методики. На рис. 10 представлены результаты измерений.

Распределения поля магнита, полученное в результате интерполирования экспериментальных данных, представлено на рис. 11. Это распределение поля магнита близко к распределению поля, полученному в результате предварительного выбора параметров магнита и моделирования распределения поля в нём [9].

Максимальное значение поля в магните равно  $0,3110$  Тл. Эффективная длина магнита вдоль центральной траектории пучка –  $33,533$  мм. Угол поворота пучка электронов с энергией  $10$  МэВ при движении через этот магнит, согласно моделированию движения, равен  $0,31$  рад.

Было исследовано изменение магнитного поля в магните при размыкании и замыкании магнитного потока в магнитопроводе при удалении и восстановлении положения верхней балки магнита. На рис. 12 представлены результаты измерений поля в семи точках датчиками Холла. Датчики располагались в центре магнита. В течение  $1000$  секунд было проведено  $10$  циклов размыкания - замыкания поля с помощью верхней балки магнита.

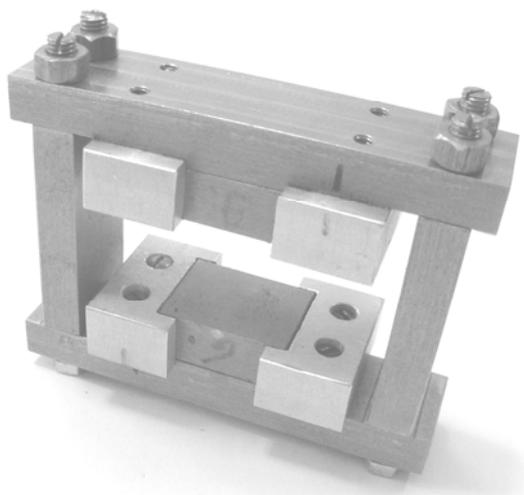


Рис. 9. Магнит в собранном виде.

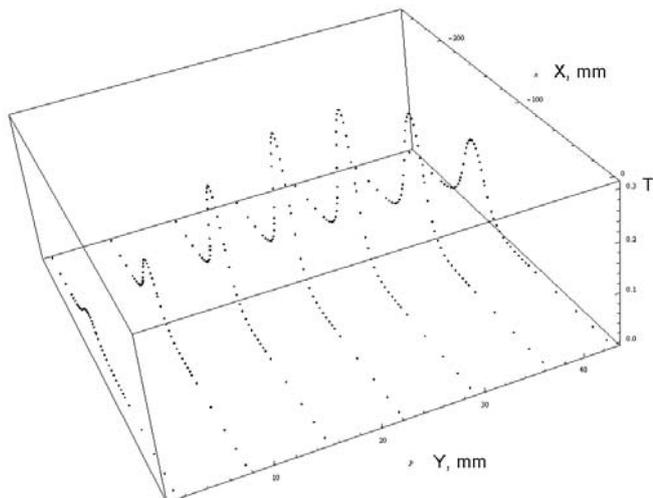


Рис. 10. Результаты измерений поля датчиками Холла.

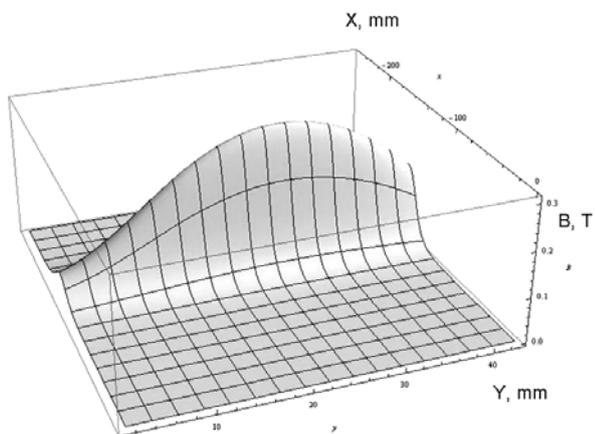


Рис. 11. Распределение поля в магните.

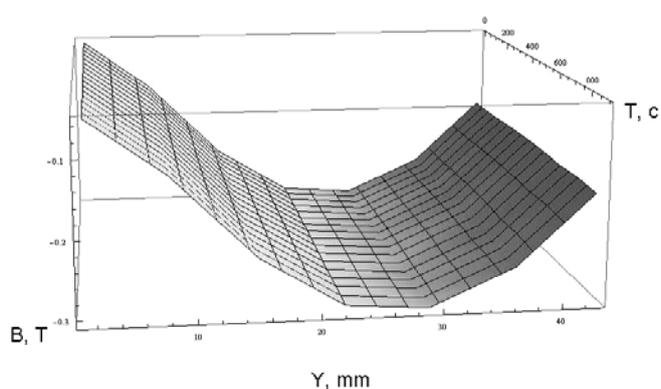


Рис. 12. Распределение поля в магните после цикла размыкание – замыкание поля.

Относительное изменение величины поля в точках измерения представлено на рис. 13. Цифры на рисунке обозначают номера датчиков. Для датчиков, расположенных вблизи центра магнита (номера датчиков 3, 4 и 5), максимальное изменение поля после замыкания поля не превышало 0,5 %.

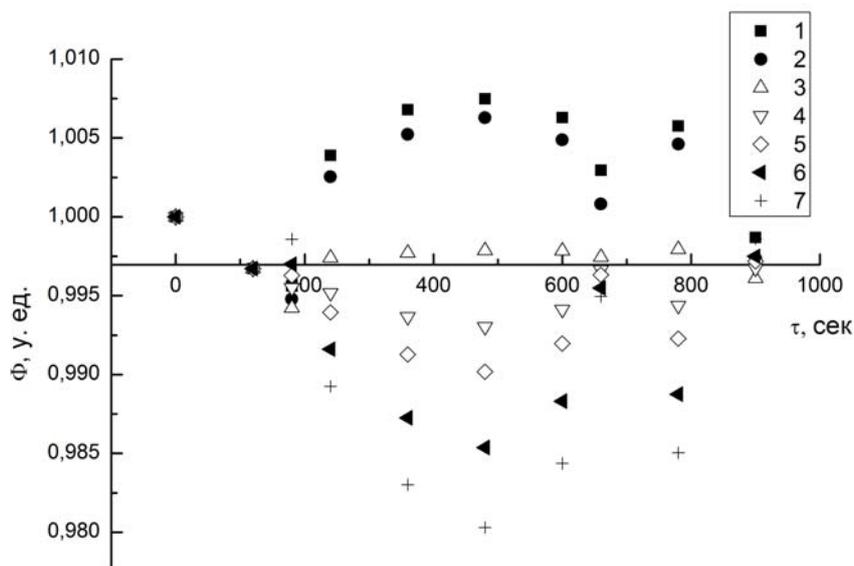


Рис. 13. Относительное изменение величины поля в местах расположения датчиков Холла.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Экспериментально обоснован выбор магнитного сплава для разработки магнита, позволяющего сохранять магнитные свойства в условиях высоких уровней облучения электронами и тормозным излучением электронного пучка. Разработан и изготовлен с использованием магнитов из Sm-Co сплава дипольный магнит для измерения энергии технологического ускорителя до 10 МэВ. Измеренные параметры поля магнита удовлетворяют заданным при разработке величинам. Магнит также может быть использован для настройки ускорителя в диапазоне энергий до 10 МэВ.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Shvedunov V. I., et al., A 70 MeV Race-Track Microtron // Nucl. Instr. Meth. – 2005. – Vol. 550. – No. 1-2. – P. 39-53.
2. David J. McLaughlin, Kenneth R. Hogstrom, Robert L. Carver, John P. Gibbons, Polad M. Shikhaliev, Kenneth L. Matthews II, Taylor Clarke, Alexander Henderson, and Edison P. Liang. Permanent-magnet energy spectrometer for electron beams from radio-therapy accelerators // Medical Physics. – 2015. – Vol. 42. – No. 9. – P. 5517- 5529.
3. Bødker F Permanent magnets in accelerators can save energy, space and cost // Proc. of IPAC2013. - Shanghai, China, - 2013. – P. 3511-3513.
4. Alex Bainbridge, Ben Shepherd, Norbert Collomb, Jim Clarke. Michele Modena The ZEPTO project: Tuneable permanent magnets for the next generation of high energy accelerators // Proc. 25th International Conference on Magnet Technology. - Amsterdam, 30th August 2017. TalkID#448, session Wed-Mo-Or19.
5. Bovda A.M., Guk I.S., Dovbnya A.N., Kononenko S.G., Lyashchenko V.N., Mytsykov A.O. Dipole magnet with a constant field for the accelerator “EPOS” // Problems of Atomic Science and Technology. Series “Nuclear Physics Investigations” – 2015. – Vol. 100. – No. 6. – P. 13-17.
6. Beloglasov V.I., Zykov A.I., Zlunitsyn E.S., Kramskoi G.D., Fursov G.L. An electron linac producing beam power up to 15 kW // Proceedings of the 1996 EPAC. – 1996. – Vol. 1. – P. 798-800.
7. Ayzatsky N.I., Dovbnya A.N. et al. Accelerating system of the technological electron accelerator // Problems of atomic science and technology. Series “Nuclear Physics Investigations”. – 2012. – Vol. 80 – No 4. – P. 45-49.
8. Dovbnya A., Guk I.S., Kononenko S., Tarasenko A. Beam transport system selection on the accelerator LU-10 // Problems of atomic science and technology. Series “Nuclear Physics Investigations”. – 2013. – Vol. 88 – No. 6. – P. 57-61.
9. Guk I.S., Kononenko S.G., Lyashchenko V.N., Mytsykov A.O., Choice of parameters of the analyzing magnet for technological electron accelerator LU-10M // Problems of atomic science and technology. Series “Nuclear Physics Investigations”. – 2017. – Vol. 112. – No. 6. – P. 24-27.
10. Okuda S., Ohashi K., Kobayashi N. Effects of electron beam and  $\gamma$ -ray irradiation on the magnetic flux of Nd-Fe-B and Sm-Co permanent magnets // Nucl. Instr. Meth. – 1994. - Vol. B94. - P. 227-230.
11. Luna H.B. et al. Bremsstrahlung radiation effects in rare earth permanent magnets // Nucl. Instr. Meth. – 1989. – Vol. 285. – No. 1. – P. 349-354.
12. Alderman J. et al. Measurement of radiation-induced demagnetization of NdFeB permanent magnets // Nucl. Instr. Meth. – 2002. – Vol. 481(1-3). – P. 1-3.
13. Dovbnya A. N. et al. Study on radiation resistance of permanent Nd-Fe-B-base magnets under continuous radiation conditions // Problems of Atomic Science and Technology. Series “Nuclear Physics Investigations”. – 1999. – Vol. 34. – No. 3. – P. 48-49.
14. Bizen T. et al. Demagnetization of undulator magnets irradiated high energy electrons // Nucl. Instr. Meth. – 2001. – Vol. 467. – P. 185-189.
15. Bizen T. et al. High-energy electron irradiation of NdFeB permanent magnets: Dependence of radiation damage on the electron energy // Nucl. Instr. Meth. – 2007. – Vol. 574. – No. 3. – P. 401-406.
16. Qiu R. et al. Radiation damage of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B permanent magnets at 2.5 GeV electron accelerator // Nucl. Instr. Meth. – 2008. – Vol. 594. – No. 2. – P. 111-118.
17. Gao R.S., et al. Study of  $\gamma$ -ray irradiation effect on permanent magnets // J. Appl. Phys. – 2008. – Vol. 103. – P. 103-105.
18. Ikeda T., Okuda S. Magnetic flux loss of the permanent magnets used for the wigglers of FELs by the irradiation with high-energy electrons or X-rays // Nucl. Instr. Meth. – 1998. – Vol. 407. – No. 1-3. – P. 439-442.
19. Simos N. et al. An experimental study of radiation-induced demagnetization of insertion device permanent magnets // Proc. EPAC 2008, Genoa, Italy. – 2008. – P. 2112-2114.
20. Vagin P., Bilani O., Schöps A., Tripathi S., Vielitz T., Tischer M. Radiation damage of undulators at PETRA III // Proc. IPAC2014, Dresden, Germany. – 2014. – P. 2019-2021.
21. Rui Qiu, Hee-Seock Lee, Junli Li, Tae-Yeong Koo, T. Bizen & Qiyong Fan. Demagnetization of Nd-Fe-B permanent magnet at 2.5 GeV electron accelerator // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2008. – Vol. 45. – P. 46-49.
22. Bizen T., Asano Y., Maréchal X.-M. SPring-8. Irradiation Experiments and Magnet Protection Plans at SPring-8 // IEEE Editorial Style Manual, IEEE Periodicals, Piscataway, NJ, USA. – Oct. 2014. – P. 34-52.
23. Bizen T. Brief review of the approaches to elucidate the mechanism of the radiation-induced demagnetization // Proc. ERL2011, Tsukuba, Japan. – 2011. – P. 121-126.
24. Bovda V.A. et al. Magnetic field losses in Nd-Fe-B magnets under 10 MeV electron irradiation // Problems of Atomic Science and Technology. Series “Nuclear Physics Investigations”. – 2017. – Vol. 109. – No. 3. – P. 90-94.
25. Bovda A.M. et al. Magnetic properties of Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> magnets under 10 MeV electron beam // Problems of Atomic Science and Technology. Series “Nuclear Physics Investigations”. – 2017. – Vol. 112. – No. 6. – P. 162-166.
26. Bovda V.A., Bovda A.M., Guk I.S., Dovbnya A.N., Kononenko S.G., Lyashchenko V.N., Mytsykov A.O., Onischenko L.V. Dipole Magnet With A Permanent Magnetic Field For Technological Electron Accelerator // Proceedings of the REPM 2016, Darmstadt, Germany. – 28 August – 1 September 2016. – P. 481-487.

PACS: 05.70.Ce

## DETERMINATION OF THERMODYNAMIC QUANTITIES OF BINARY METAL SYSTEMS WITH LOW SOLUBILITY OF COMPONENTS IN THE SOLID $\alpha$ -PHASE

**A.P. Shcherban, O.A. Datsenko**

*National Scientific Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"  
1, Academicheskaya st., Kharkov, 61108, Ukraine*

*E-mail: [shcherban@kipt.kharkov.ua](mailto:shcherban@kipt.kharkov.ua), <https://orcid.org/0000-0002-6004-0579>*

*Received June 7, 2018; accepted September 10, 2018*

The method for determining the thermodynamic quantities: the partial enthalpy of dissolution  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$ , the activity coefficients  $\gamma_B^\alpha$  and activities  $a_B^\alpha$  of the second component B in binary metallic systems with low solubility in the solid  $\alpha$ -phase has been proposed. The algorithm for determining the above values is a sequence of preliminary calculations of the limiting and equilibrium distribution coefficients and construction of saturated solid solution lines for such systems with low solubility of the second component. Preliminarily obtained data are necessary for determining the partial enthalpy of dissolution and other quantities in the systems under study. Such a sequence of calculations is the proposed method for determining the thermodynamic parameters of dissolution. The values and temperature dependences of the dissolution enthalpy of component having a low solubility for such systems as Cd-Na, Cd-Tl, Te-Ga, Te-As, Te-Cu, Zn-Sn, as well as the activity coefficients  $\gamma_B^\alpha$  and the activities  $a_B^\alpha$  of the second component in the saturating  $\alpha$ -phase in these systems were determined. An analysis of obtained results on the enthalpy of dissolution shows that a change in the partial enthalpy with a change in the dissolution temperature is observed. When the temperature decreases from the melting point of the pure main component to the eutectic temperature, an increase in the partial enthalpies of dissolution of the second component is observed for studied systems. The Te-Ga system is characterized by a negative value  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$ . A negative value  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$  indicates an exothermic process of gallium dissolution in tellurium, in contrast to other systems in which the dissolution of the second component occurs with heat absorption. Analyzing the enthalpy of dissolution in the systems under study, it should be noted that the low values of  $\Delta\bar{H}_B^\alpha < 2000$  J/mol are characterized by the systems Cd-Na and Te-Ga. For systems Te-Cu, Te-As, Te-Tl, Zn-Sn  $\Delta\bar{H}_B^\alpha > 15000$  J/mol. Systems with a value  $\Delta\bar{H}_B^\alpha > 15000$  J/mol reveal a tendency to the occurrence of retrograde solubility in them. The difference in values  $\gamma_B^\alpha$  is found to be more than two orders of magnitude for different systems.

**KEY WORDS:** binary metal systems,  $\alpha$ -phase, dissolution enthalpy, activity coefficient, activity, retrograde solubility, phase diagram

### ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ ВЕЛИЧИН БИНАРНЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ СИСТЕМ С НИЗКОЙ РАСТВОРИМОСТЬЮ КОМПОНЕНТОВ В ТВЕРДОЙ $\alpha$ -ФАЗЕ

**А.П. Щербань, О.А. Даценко**

*Национальный Научный Центр "Харьковский физико-технический институт  
ул. Академическая 1, г. Харьков, 61108, Украина*

Предложен метод определения термодинамических величин: парциальной энтальпии растворения  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$ , коэффициентов активности  $\gamma_B^\alpha$  и активностей  $a_B^\alpha$  второго компонента В в двойных металлических системах с низкой растворимостью в твердой  $\alpha$ -фазе. Алгоритм определения выше указанных величин заключается в последовательности предварительных расчетов предельных и равновесных коэффициентов распределения и построения линий насыщенного твердого раствора для таких систем с низкой растворимостью второго компонента. Предварительно полученные данные являются необходимыми для определения парциальной энтальпии растворения  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$  и других величин в исследуемых системах. Такая последовательность расчетов является предлагаемым методом определения термодинамических параметров растворения. Определены значения и температурные зависимости энтальпии растворения малорастворимого компонента для таких систем как Cd-Na, Cd-Tl, Te-Ga, Te-As, Te-Cu, Zn-Sn, а также коэффициенты активности  $\gamma_B^\alpha$  и активности  $a_B^\alpha$  второго компонента в насыщенной  $\alpha$ -фазе в этих системах. Анализ полученных результатов по энтальпии растворения показывает, что наблюдается изменение парциальной энтальпии с изменением температуры растворения. При снижении температуры от точки плавления чистого основного компонента до температуры эвтектики наблюдается увеличение парциальных энтальпий растворения второго компонента для исследованных систем. Система Te-Ga характеризуется отрицательным значением  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$ . Отрицательное значение  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$  указывает на экзотермический процесс растворения галлия в теллуре, в отличие от других систем, в которых растворение второго компонента происходит с поглощением тепла. Анализируя значения энтальпии растворения в исследуемых системах, необходимо отметить, что низким значением  $\Delta\bar{H}_B^\alpha < 2000$  Дж/моль характеризуются системы Cd-Na и Te-Ga. Для систем Te-Cu, Te-As, Te-Tl, Zn-Sn  $\Delta\bar{H}_B^\alpha > 15000$  Дж/моль. Системы со значением  $\Delta\bar{H}_B^\alpha > 15000$  Дж/моль выявляют тенденцию к возникновению в них ретроградной растворимости. Выявлено различие в значениях  $\gamma_B^\alpha$  более, чем на два порядка для различных систем.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** двойные металлические системы,  $\alpha$ -фаза, энтальпия растворения, коэффициент активности, активность, ретроградная растворимость, диаграмма состояния

### ВИЗНАЧЕННЯ ТЕРМОДИНАМІЧНИХ ВЕЛИЧИН БІНАРНИХ МЕТАЛЕВИХ СИСТЕМ З НИЗЬКОЮ РОЗЧИННІСТЮ КОМПОНЕНТІВ У ТВЕРДІЙ $\alpha$ -ФАЗИ

О.П. Щербань, О.А. Даценко

Національний Науковий Центр "Харківський фізико-технічний інститут"

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

Запропоновано метод визначення термодинамічних величин: парціальної ентальпії розчинення  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$ , коефіцієнтів активності  $\gamma_B^\alpha$  та активностей  $a_B^\alpha$  другого компонента В в подвійних металевих системах з низькою розчинністю у твердій  $\alpha$ -фазі. Алгоритм визначення вище зазначених величин полягає в послідовності попередніх розрахунків граничних і рівноважних коефіцієнтів розподілу і побудови ліній насиченого твердого розчину для таких систем з низькою розчинністю другого компонента. Попередньо отримані дані є необхідними для визначення парціальної ентальпії розчинення і інших величин в досліджуваних системах. Така послідовність розрахунків є запропонованим методом визначення термодинамічних параметрів розчинення. Визначені значення і температурні залежності ентальпії розчинення малорозчинного компонента для таких систем як Cd-Na, Cd-Tl, Te-Ga, Te-As, Te-Cu, Zn-Sn, а також коефіцієнти активності  $\gamma_B^\alpha$  і активності  $a_B^\alpha$  другого компонента в насиченій  $\alpha$ -фазі в цих системах. Аналіз отриманих результатів по ентальпії розчинення показує, що спостерігається зміна парціальної ентальпії зі зміною температури розчинення. При зниженні температури від точки плавлення чистого основного компонента до температури евтектики спостерігається збільшення парціальних ентальпій розчинення другого компонента для досліджених систем. Система Te-Ga характеризується від'ємним значенням  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$ . Негативне значення  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  вказує на екзотермічний процес розчинення галію в телурі, на відміну від інших систем, в яких розчинення другого компонента відбувається з поглинанням тепла. Аналізуючи значення ентальпії розчинення в досліджуваних системах, необхідно відзначити, що низьким значенням  $\overline{\Delta H}_B^\alpha < 2000$  Дж/моль характеризуються системи Cd-Na і Te-Ga. Для систем Te-Cu, Te-As, Te-Tl, Zn-Sn  $\overline{\Delta H}_B^\alpha > 15000$  Дж/моль. Системи зі значенням  $\overline{\Delta H}_B^\alpha > 15000$  Дж/моль виявляють тенденцію до виникнення в них ретроградної розчинності. Виявлено відмінність у значеннях  $\gamma_B^\alpha$  більш, ніж на два порядки для різних систем.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** подвійні металеві системи,  $\alpha$ -фаза, ентальпія розчинення, коефіцієнт активності, активність, ретроградна розчинність, діаграма стану

Вопросы образования твердых растворов занимают важное место в термодинамике твердого состояния. Как в природе, так и в технике постоянно приходится иметь дело с растворами, а не с чистыми компонентами. Чистые вещества представляют собой лишь предельное состояние, которое никогда в действительности не достигается. Получаемые в современной технике методами вакуумной дистилляции и зонной плавкой высокочистые металлы все же содержат ничтожные количества ( $10^{-6}$  %) примесей и по существу являются растворами.

Задачей физико-химического анализа является установление зависимости между составом и свойством сложных систем. Для металловедения и металлургии, в том числе и расчета эффективности получения высокочистых металлов и сплавов, представляет особый интерес в качестве основного свойства выбрать температуры равновесия между жидкой и твердой фазами, а также температуры фазовых равновесий в твердом состоянии. Основные типы фазовых равновесий в виде диаграмм состояния (ДС) представлены в работе [1].

При образовании твердых растворов и равновесии между фазами различного состава одним из основных термодинамических параметров является парциальная энтальпия растворения  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  компонента В в твердой  $\alpha$ -фазе. Другими важными термодинамическими величинами являются коэффициенты активности  $\gamma_B^\alpha$  и сами активности  $a_B^\alpha$  растворяемого элемента. Представляет практический интерес исследования этих термодинамических величин при растворении малорастворимых компонентов в основе.

В данной работе предлагается алгоритм определения значений выше указанных параметров в бинарных металлических системах с низкой растворимостью компонентов в твердом состоянии. Расчеты выполнены для диаграмм равновесия, в которых для упрощения с достаточным приближением считается, что из жидкости выделяются в виде отдельных фаз чистые компоненты.

### ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Поскольку абсолютной нерастворимости компонентов друг в друге не существует, на ДС должна быть линия ограниченной растворимости  $\alpha$ -фазы как функция температуры и состава. Отсутствие таких линий связано с тем, что в некоторых двойных системах области твердых растворов  $\alpha$ -фазы настолько узкие ( $< 1$  ат.%), что точное экспериментальное определение их является затруднительным. К такому типу ДС относятся многие системы, такие как Cd-Na, Cd-Tl, Te-As, Te-Cu, Te-Ga, Zn-Sn и др.

Системы с такой низкой растворимостью можно отнести к системам с "вырожденной" эвтектикой, изображение области первичных твердых растворов которых в обычных масштабах на ДС не представляется возможным (воображаемые линии солидуса совпадают с осью ординат чистых компонентов). Визуальное представление таких воображаемых областей предельного растворения возможно при переходе к логарифмическим

координатам изображения.

Ранее авторами данной работы были подробно исследованы как выше перечисленные, так и другие системы такого типа на предмет определения в них предельных  $k_{0limB}$  и равновесных  $k_{0B}$  коэффициентов распределения компонента В при кристаллизации из расплава [2-4]. Значения этих величин были использованы для расчета предельной растворимости вторых компонентов  $X_{B(насыщ)}^\alpha$  и построения линий солидуса диаграмм состояния [5-7]. Полученные в перечисленных выше работах данные использованы в данной работе для определения парциальной энтальпии растворения  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  и других величин в исследуемых системах. Такая последовательность расчетов является предлагаемым алгоритмом определения термодинамических параметров растворения.

Справочные данные по значению термодинамических величин растворения весьма ограничены, а для металлических систем с низкой растворимостью компонентов и вовсе отсутствуют.

Целью работы является определение по предложенному алгоритму значений таких термодинамических величин, как парциальная энтальпия растворения  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$ , коэффициент активности  $\gamma_B^\alpha$  и активность  $a_B^\alpha$  второго компонента в бинарных металлических системах с низкой растворимостью в твердой  $\alpha$ -фазе.

### МЕТОДИКА РАСЧЕТОВ, РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для определения  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  необходимо иметь такое соотношение, которое бы связывало эту величину с известными справочными термодинамическими величинами, такими как энтальпии и энтропии плавления основного и второго компонента, а также концентрациями насыщения компонента В в твердой  $\alpha$ -фазе и жидкой фазе в зависимости от температуры, что представляется линиями солидуса и ликвидуса на диаграммах состояния. В работе [8] получено такое выражение:

$$\ln \frac{X_{B(насыщ)}^\alpha}{X_B^ж} = \frac{\Delta H_{плB} - \overline{\Delta H}_B^\alpha}{RT} - \frac{\Delta S_{плB}}{R}, \quad (1)$$

где  $X_{B(насыщ)}^\alpha$  - максимальная концентрация растворенного компонента В в  $\alpha$ -фазе при температуре  $T$ ;  $X_B^ж$  - концентрация растворенного компонента В в жидкой фазе;  $\Delta H_{плB}$  - изменение энтальпии при плавлении компонента В;  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  - парциальная энтальпия растворения компонента В в  $\alpha$ -фазе;  $R$  - универсальная газовая постоянная;  $\Delta S_{плB}$  - изменение энтропии при плавлении компонента В.

Вывод искомого выражения выполнен в предположении, что  $\alpha$ -фаза ведет себя как регулярный раствор, а жидкая фаза, находящаяся в равновесии с  $\alpha$ -фазой выше эвтектической температуры, ведет себя как идеальный раствор. Отношение  $X_{B(насыщ)}^\alpha / X_B^ж$  известно как коэффициент распределения, его часто обозначают символом  $k_{0B}$ .

Из зависимости (1) получаем аналитическое выражение (2) для определения парциальной энтальпии растворения компонента В в  $\alpha$ -фазе, которое использовалось для расчетов в данной работе.

$$\overline{\Delta H}_B^\alpha = -RT \ln \frac{X_{B(насыщ)}^\alpha}{X_B^ж} + \Delta H_{плB} - T\Delta S_{плB} \quad (2)$$

Для расчетов значений  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  отношения  $X_{B(насыщ)}^\alpha / X_B^ж$  для каждой системы брали из работы [7]. Справочные данные для расчетов по энтальпии и энтропии плавления растворенного компонента взяты из работы [9].

Для исследованных систем Cd-Na, Cd-Tl, Te-As, Te-Cu, Te-Ga, Zn-Sn температурная зависимость значений  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$ , рассчитанная по формуле (2), представлена на рис. 1.

Зная величину  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$ , можно из выражения (3), которое также было получено в работе [8] при выводе зависимости (1), определить коэффициент активности  $\gamma_B^\alpha$ .

$$RT \ln \gamma_B^\alpha = \overline{\Delta H}_B^\alpha, \quad (3)$$

где,  $\gamma_B^\alpha$  - коэффициент активности компонента В в насыщенной  $\alpha$ -фазе при температуре Т;  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$ , R и T и - те же величины, что и в (1).

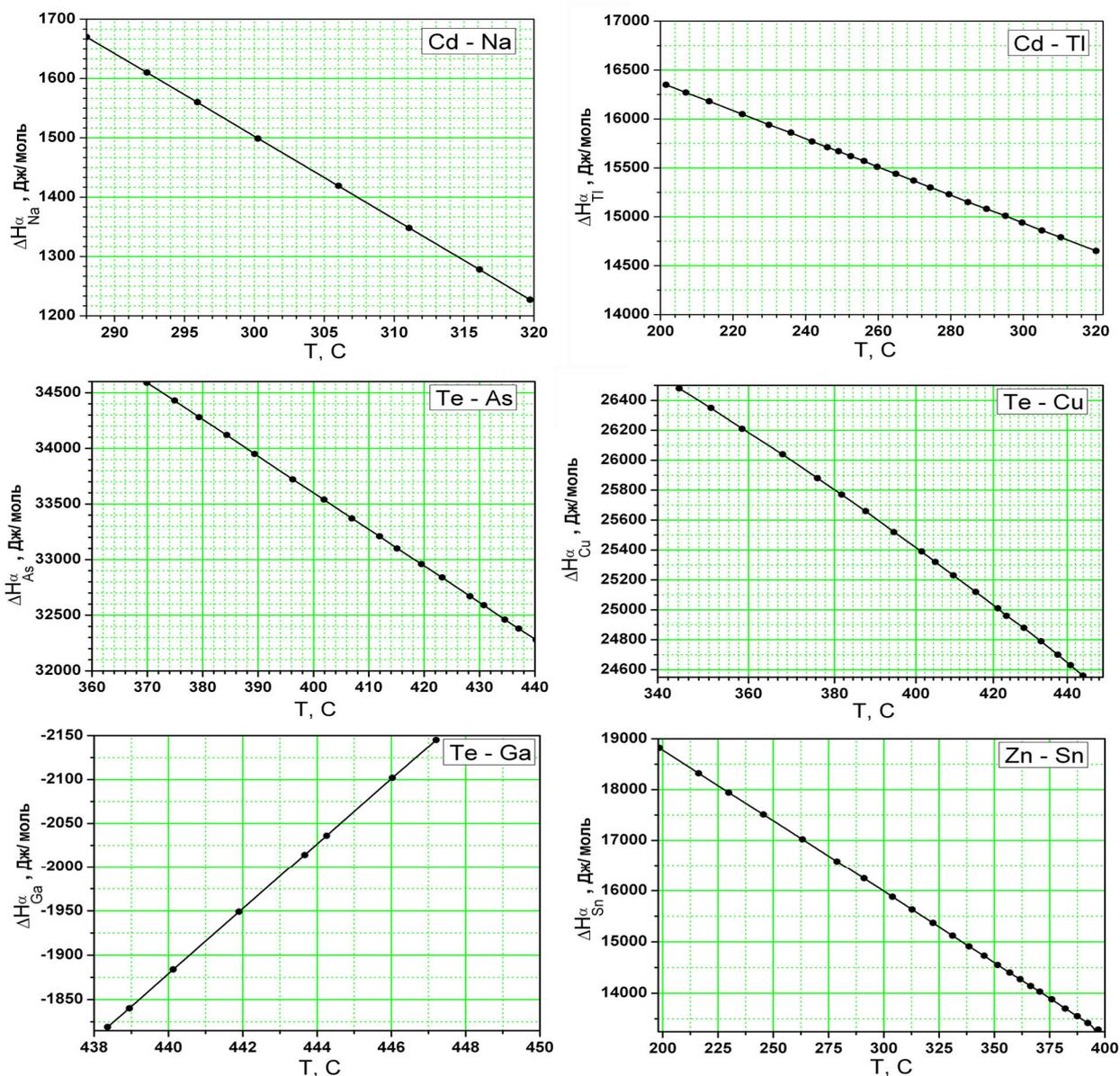


Рис. 1. Зависимость энтальпии растворения примеси в металле от температуры для систем: Cd-Na, Cd-Tl, Te-As, Te-Cu, Te-Ga, Zn-Sn.

На рис. 2 представлены графические значения коэффициентов активности  $\gamma$  как функции обратной температуры для исследованных систем.

Анализ полученных результатов по энтальпии растворения показывает, что наблюдается изменение парциальной энтальпии с изменением температуры растворения. При снижении температуры от точки плавления чистого основного компонента до температуры эвтектики наблюдается увеличение парциальных энтальпий растворения второго компонента. Из общей закономерности положительных значений парциальных энтальпий растворения для исследованных систем отличительную особенность проявляет система Te-Ga, которая характеризуется отрицательным значением  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$ . Отрицательное значение  $\Delta\bar{H}_B^\alpha$  указывает на экзотермический процесс растворения галлия в теллуре, в отличие от других систем, в которых растворение второго компонента происходит с поглощением тепла.

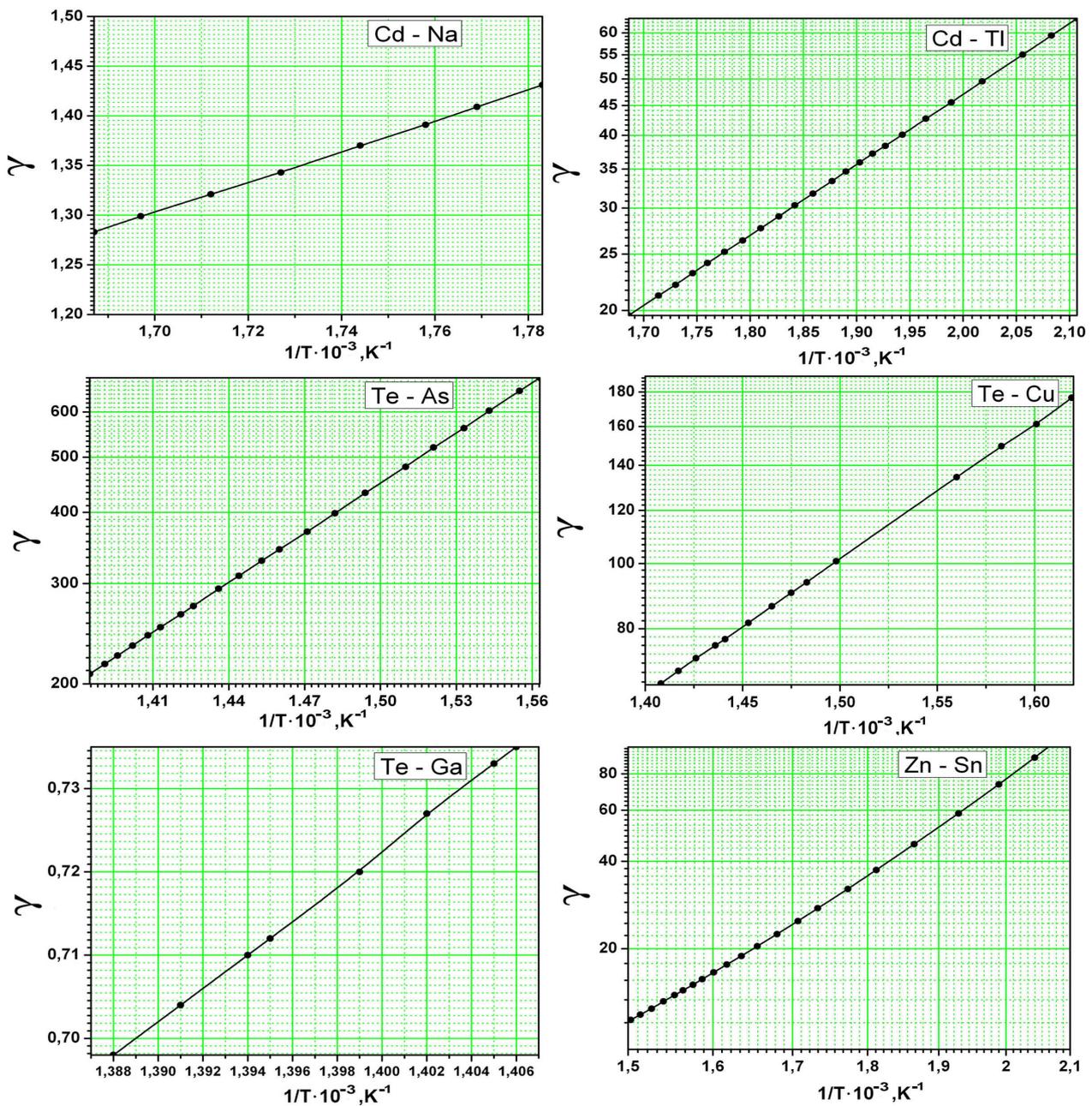


Рис. 2. Значения коэффициента активности примеси в твердой  $\alpha$ -фазе в зависимости от обратной температуры для систем: Cd-Na, Cd-Tl, Te-As, Te-Cu, Te-Ga, Zn-Sn.

Анализируя значения энтальпии растворения в исследуемых системах, необходимо отметить, что низким значением  $\Delta \bar{H}_B^\alpha < 2000$  Дж/моль характеризуются системы Cd-Na и Te-Ga. Для систем Te-Cu, Te-As, Te-Tl, Zn-Sn  $\Delta \bar{H}_B^\alpha > 15000$  Дж/моль. Построенные для этих систем линии солидуса [7] выявляют тенденцию к возникновению в них ретроградной растворимости, что можно связать с высокими значениями  $\Delta \bar{H}_B^\alpha$  в этих системах.

В работах [8, 10] приводятся данные о ретроградной растворимости малорастворимых примесей в Ge и Si. Авторы этих работ связывают явление отрицательной (ретроградной) растворимости с относительной парциальной энтальпией растворенного вещества в твердом растворителе. Как показал расчет, для систем с относительно низким значением  $\Delta \bar{H}_B^\alpha$  не обнаруживается тенденции к ретроградной растворимости, но с увеличени-

ем значения парциальной энтальпии тенденция к ретроградной растворимости растет.

Анализ зависимостей коэффициентов активности  $\gamma_B^\alpha$  от обратных температур (рис. 2 показывает, что значения  $\gamma_B^\alpha$  для различных систем существенно (на два порядка) разнятся.

Зная коэффициенты активности второго компонента в  $\alpha$ -фазе можно определить и саму активность  $a_B^\alpha$  компонента В в  $\alpha$ -фазе в зависимости от концентрации насыщения. Активность определяли, используя следующее выражение

$$a_B^\alpha = \gamma_B^\alpha X_{\text{В(насыщ)}}^\alpha \quad (4)$$

В таблице приведены расчетные значения полученных термодинамических величин второго компонента в системах Cd-Na, Cd-Tl, Te-As, Te-Cu, Te-Ga, Zn-Sn для трех значений температур и соответствующих им концентраций.

Таблица

Термодинамические величины и их значения для выбранных температур и концентраций

Система	Т,С	Концентрация, ат.%	Н, Дж/моль	$\gamma$	Активность, %
Cd - Na	316,12	0,626	1278	1,299	0,813
	306,02	1,561	1419	1,343	2,097
	288	2,624	1670	1,431	3,756
Cd - Tl	295,09	0,252	15010	24,127	6,074
	256,08	0,902	15570	34,66	31,257
	222,55	1,404	16050	49,51	69,526
Te - As	443,35	0,013	32180	224,148	2,924
	440,21	0,019	32280	233,462	4,427
	406,94	0,059	33370	369,807	21,784
Te - Ga	446,03	0,369	-2102	0,703	0,259
	443,67	0,932	-2014	0,713	0,664
	438,95	1,548	-1840	0,732	1,134
Zn -Sn	403,12	0,241	11830	8,232	1,984
	356,93	1,450	14400	15,708	22,777
	229,89	1,095	17940	73,556	80,544
Te - Cu	440,88	0,145	24660	64,191	9,311
	415,37	0,464	25150	81,603	37,898
	351,60	0,695	26380	161,226	112,035

Температуры выбраны вблизи температуры плавления чистого компонента и вблизи температуры эвтектики с одним промежуточным значением. Отношение активностей в крайних точках значительно ( $\sim$  в 10 раз) отличается от системы к системе. Например, для системы Cd-Na оно равно 4, а для Zn-Sn – 40,5.

## ВЫВОДЫ

Предложен расчетный метод определения значений таких термодинамических величин, как парциальная энтальпия растворения  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$ , коэффициент активности  $\gamma_B^\alpha$  и активность  $a_B^\alpha$  второго компонента В в двойных металлических системах с низкой растворимостью В в твердой  $\alpha$ -фазе.

Определены значения и температурные зависимости энтальпии растворения малорастворимого компонента для систем Cd-Na, Cd-Tl, Te-As, Te-Cu, Te-Ga, Zn-Sn. Выявлено, что системы Te-Cu, Te-As, Te-Tl, Zn-Sn со значением  $\overline{\Delta H}_B^\alpha > 15000$  Дж/моль проявляют тенденцию к возникновению в них ретроградной растворимости, что можно связать с высокими значениями  $\overline{\Delta H}_B^\alpha$  в этих системах.

Построены графические зависимости коэффициентов активности  $\gamma_B^\alpha$  от температуры. Значения коэффициентов активности в различных двойных системах отличаются более чем на два порядка.

Определены активности  $a_B^\alpha$  малорастворимых компонентов в насыщенной твердой  $\alpha$ -фазе в этих системах в зависимости от температуры и концентрации. Отношение активностей вблизи температуры плавления чистого компонента и вблизи температуры эвтектики значительно отличается в разных системах. Так, для системы Cd-Na оно равно 4, а для системы Zn-Sn – 40,5.

## СПИСОК ЛІТЕРАТУРЫ

1. Lyakishev N.P. Phase diagrams of binary metal system. - Vol.1. - M.: Mashinostroyeniye, 1996. – 992 p.; Vol.2. - M.: Mashinostroyeniye, 1997. – 1024 p. (in Russian)
2. Kovtun G.P., Scherban' A.P., Datsenko O.A. Determination of the limiting impurity distribution coefficients  $k_{0\text{limB}}$  in cadmium and zinc // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Ser.: Vacuum, pure materials, superconductors. – 2002. – No. 1(12). – P. 151-155. (in Russian)
3. Kovtun G.P., Scherban' A.P., Datsenko O.A. Calculation method for determining the limiting impurity distribution coefficients  $k_{0\text{limB}}$  at the directional crystallization of metals // Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Ser.: Vacuum, pure materials, superconductors. – 2003. – No. 5(13). – P. 3-6. (in Russian)
4. Scherban' A.P. The limiting distribution coefficients of low-soluble impurities in metals // Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University. Series Nuclei, particles, fields. – 2011. – No. 946. – Iss.1(49) – P. 75-80. (in Russian)
5. Kovtun G.P., Scherban' A.P. Estimation of the solubility limit of low-soluble components under eutectic transformations in the binary metal systems // Problem of Atomic Science and Engineering. – 2014. – No. 1(89). – P. 37-40.
6. Scherban' A.P., Datsenko O.A. Analysis of phase diagrams of binary metal systems in the field at low concentration of components // Journal of V.N. Karazin Kharkiv National University. Series Nuclei, particles, fields. – 2013. – No. 1069. – Iss. 4(60). – P. 95–99. (in Russian)
7. Scherban A.P., Datsenko O.A., Kovtun G.P. Construction of Solidus Lines of Binary Metal Systems Having a Low Solubility of Components in the Solid Phase // Open Journal of Metal. – 2014. – Vol. 4. – P. 65-71.
8. Svellin R.A. Solid phase thermodynamics. – Metallurgiya, 1968. – 316 p.
9. Barthel J., Buhrig E., Hein K., Kuchař L. Crystallisation aus Schmelzen // Reference manual: Translation from German. - M.: Metallurgy, 1987. – 320 p. (in Russian).
10. Kröger F.A. Chemistry of imperfect crystals. – Translation under the editorship of Poltorak O.M., 1969. - 654 p.

Алла Таньшина\*

*К 100-летию юбилею НАН Украины & 90-летию УФТИ – ННЦ «ХФТИ»**Светлой памяти академика И. Обреимова,  
директора-организатора УФТИ*

**СТОИТ НАПОМНИТЬ:  
«ЭТОГО НИГДЕ В СССР НЕ БЫЛО». –  
УКРАИНА, ХАРЬКОВ, УФТИ**  
*Продолжение. Начало в №1 (2018)*

...исключительно важным является  
крайне осторожное обращение  
с людьми больших творческих сил и редких способностей.  
*Из письма А. Эйнштейна И. Сталину*

**«З/к, в котором можно было угадать интеллигента»**

В 1938 г. был арестован органами НКВД и освобожден  
24 мая 1941 г. по ст. 4, п. 5 УПК РСФСР (отсутствие состава преступления).  
В это время выполнил большую работу «О приложениях френелевой  
дифракции для физических и технических приложений».  
*Из автобиографии И. Обреимова*

Первый директор УФТИ познал не только счастье ученого и организатора науки, но и горечь необоснованного ареста. В конце 30-х годов в УФТИ настал один из самых мрачных периодов его истории – необоснованные репрессии.

Весьма показательны задокументированные свидетельства А. Вайсберга, тогдашнего иностранного сотрудника УФТИ:

**«Наш институт – один из самых значительных в Европе. Возможно даже, что в Европе нет института, столь же хорошо оснащенного и имеющего так много различных лабораторий, как наш»\*\*.**

Правительство не пожалело денег. Ведущие ученые частично получили образование за границей. Долгое время их посылали за государственный счет к знаменитейшим физикам мира для продолжения образования. В нашем институте 8 отделов, во главе их стояли 8 научных руководителей. Как все это выглядит теперь?

Лаборатория кристаллов... Руководитель Обреимов — арестован.

1-я криогенная лаборатория... Руководитель Шубников — арестован.

2-я криогенная лаборатория... Руководитель Руэманн — выдворен из страны.

Ядерная лаборатория... Руководитель Лейпунский — арестован.

Рентгеновский отдел ... Руководитель Горский — арестован.

Отдел теоретической физики... Руководитель Ландау — арестован.

Опытная станция глубокого охлаждения... Руководитель Вайсберг — арестован.

Лаборатория ультракоротких волн... Руководитель Слуцкий пока работает...».

Однако репрессии вызвали и никем непредсказуемый огромный международный резонанс: буквально не весь тогдашний мировой олимп физической науки поднял свои голоса в защиту несправедливо осужденных уфтинцев.

Даже Эйнштейн в официальной порядке обращался к Сталину, поскольку искренне был убежден в лояльности репрессированных ученых.

Господину Иосифу Сталину,  
Москва, СССР.  
Пасадена, 16 мая 1938 года

Глубокоуважаемый господин Сталин!

В последнее время мне стали известны много случаев, когда видные ученые в России обвиняются в тяжких

\* Статья написана по материалам докторской диссертации (научный куратор – академик НАН Украины Виктор Григорьевич Барьяхтар).

\*\* Из резолюции проверочной комиссии ОФМН АН СССР от 12-18 мая 1939 г.: «Основное, что характеризует ХФТИ и относится к его бесспорным достоинствам, это его колоссальное оборудование и огромный технический опыт. По своему техническому оснащению ХФТИ является первым физическим институтом в СССР».

преступлениях, как люди, сохраняющие полное доверие в своих человеческих отношениях с зарубежными коллегами. Я понимаю, и Вам это известно, что во времена кризисов и волнений случается, что подозрение падает на невиновных и достойных людей. Но я также убеждён в том, что как с общечеловеческой точки зрения, так и в интересах успешного развития русского соиздания **исключительно важным является крайне осторожное обращение с людьми больших творческих сил и редких способностей.**

В этой связи я очень просил бы Вас обратить внимание на дело Александра Вайсберга, г. Харьков. Господин Вайсберг, австрийский гражданин, инженер-физик, работал в Украинском физико-техническом институте в Харькове. В особенности я хотел бы попросить о том, чтобы было принято во внимание заключение о деятельности доктора Вайсберга, которое профессор Мартин Руэмманн (руководитель опытного участка низких температур) направил весной 1937 года в Народный комиссариат тяжёлой промышленности.

С уважением, профессор Альберт Эйнштейн

Сколь веским был международный резонанс, освещает и следующее ходатайство за подписью трёх лауреатов Нобелевской премии:

Господину Генеральному прокурору СССР.  
Париж, 15 июня 1938 г.

Глубокоуважаемый господин Генеральный прокурор!

Мы, нижеподписавшиеся, друзья Советского Союза, считаем своим долгом поставить Вас в известность о следующем.

Содержание под стражей двух выдающихся иностранных физиков, доктора Фридриха Хоутерманса, арестованного 1 декабря 1937 г. в Москве, и господина Александра Вайсберга, арестованного 1 марта этого же года в г. Харькове, воспринято в научных кругах Европы и США с большим недоумением.

Так как господа Хоутерманс и Вайсберг пользуются в этих кругах авторитетом, следует опасаться, что их продолжительное содержание под стражей станет ещё одним толчком в той кампании, которая в настоящее время приносит значительный ущерб авторитету страны социализма и сотрудничеству СССР с западными странами.

Это усложняется ещё тем обстоятельством, что учёные, считающие себя друзьями и постоянными защитниками СССР от нападков противников, не получают никакой информации от советских властей о положении Хоутерманса и Вайсберга, несмотря на их длительное заключение, и они с большим недоумением воспринимают происходящее.

Хоутерманс и Вайсберг имеют среди всемирно известных ученых многочисленных друзей, например, профессора Эйнштейна в Пасадене, профессора Блэккетта в Манчестере, профессора Нильса Бора в Копенгагене, которые сочувствуют им и будут участвовать в судьбе обоих ученых.

Господин Вайсберг, являющийся одним из основателей и редактором журнала *«Zeitschrift für Physik»* в СССР, получил приглашение профессора Эйнштейна в университет в г. Пасадена. Из-за своего ареста он не имеет возможности воспользоваться этим приглашением.

По этой же причине и доктор Хоутерманс, получивший приглашение в институт в Лондоне для проведения научных исследований, не смог им воспользоваться – в момент ареста он находился уже в таможенном зале московского вокзала...

Ответственные лица в СССР в последнее время сделали несколько официальных заявлений о том, что во время чистки, которая была необходима из-за угрозы стране со стороны внутренних и внешних врагов, исполнительными органами были допущены ошибки, неизбежные в подобное критическое время; официальные лица считали крайне важным подчеркнуть необходимость устранения таких ошибок и злоупотреблений.

Мы, нижеподписавшиеся и все друзья обоих обвиняемых, убеждены в том, что в данном случае это и есть подобное недоразумение.

Поэтому они обращаются к Генеральному прокурору СССР с тем, чтобы обратить его внимание на дела Хоутерманса и Вайсберга и просят его ради авторитета СССР в зарубежных научных кругах предпринять срочные меры к немедленному освобождению обоих.

Важнейшее политическое значение этого обстоятельства даёт нам право переслать копию этого письма через посольство СССР в Париже господину Сталину...

Ирен Жолио-Кюри, лауреат Нобелевской премии.

Жан Перрен, лауреат Нобелевской премии.

Фредерик Жолио-Кюри, лауреат Нобелевской премии

Далее цитируется официальное письмо за подписью лауреата Нобелевской премии Нильса Бора.

Н. Бор – И. Сталину

Институт теоретической физики  
при Копенгагенском университете.  
23 сентября 1938 г.

И. Сталину. –  
Секретарю Коммунистической Партии Советского Союза.

Только чувство глубокой благодарности за деятельное и плодотворное сотрудничество, в котором мне посчастливилось состоять в течение многих лет с учеными Советского Союза, и глубокое впечатление, полученное мною

при неоднократных посещениях СССР от того, с каким воодушевлением и успехами ведётся и поощряется там научно-исследовательская работа, – побуждает меня обратить Ваше внимание на дело одного из значительнейших физиков молодого поколения, а именно на дело профессора Л.Д. Ландау из Института по изучению физических проблем при советской Академии наук.

Профессор Ландау, в сущности, завоевал себе признание научного мира не только за ряд весьма значительных вкладов в атомную физику. Благодаря своему плодотворному влиянию на молодых ученых, он решающим образом способствовал также основанию в СССР школы теоретической физики, откуда вышли незаменимые работники для грандиозных научно-экспериментальных исследований, производящихся теперь в новых, великолепно оборудованных лабораториях во всех частях СССР.

В течение многих лет я имел огромное удовольствие поддерживать с профессором Ландау весьма близкую связь и регулярно вести переписку по научным проблемам, глубоко интересовавших нас обоих. Однако, к моему глубокому огорчению, я не получил ответа на мои последние письма, и, насколько мне известно, никто из других многочисленных иностранных физиков, с особым интересом следящих за его работой, не получал от него известий. Я пытался также наладить с профессором Ландау связь, сделав запрос через советскую Академию Наук, членом которой я имею честь состоять; однако недавно полученный мною от Президента Академии Наук ответ не содержал никаких сведений относительно местопребывания или судьбы профессора Ландау.

Я этим глубоко огорчен, в особенности в связи с тем, что до меня недавно дошли слухи об аресте профессора Ландау. Я всё же продолжаю надеяться, что эти слухи не имеют основания; если же профессор Ландау действительно арестован, то я убежден в том, что здесь идет речь о прискорбном недоразумении; ибо **я не могу себе представить, чтобы профессор Ландау, который целиком посвятил себя научно-исследовательской работе и искренность которого я высоко ценю, мог совершить нечто такое, что оправдывало бы арест.**

Ввиду огромного значения этого обстоятельства как для науки в СССР, так и для международного сотрудничества, я обращаюсь к Вам с настоятельной просьбой о назначении расследования об участии профессора Ландау с тем, чтобы, в случае, если здесь действительно имеет место недоразумение, этот необычайно одаренный и успешно работающий ученый снова имел бы возможность принимать участие в весьма важной для прогресса человечества научно-исследовательской работе.

Нильс Бор,  
профессор Копенгагенского университета

И безусловно, лауреаты Нобелевской премии вряд ли позволили себе вольность в описании реалий тех лет. Показателен и следующий факт – Иван Васильевич Обреимов также и в тюрьме не оставлял занятий наукой.

«В период следствия в Бутырской тюрьме в результате хлопот А.Ф. Иоффе перед Сталиным ему было разрешено работать. Он начал писать книгу, обобщающую и развивающую его предыдущие работы по приложению френелевой дифракции к физическим и техническим измерениям.

В тамбуре карцера, между дверьми, оборудовали подобие письменного стола, за которым И.В. Обреимов и работал. Супруга Ивана Васильевича Александра Ивановна Прейсфрейнд передавала ему необходимые материалы и книги, а также папиросную бумагу для самокруток и чеснок, которыми И.В. Обреимов делился с сокамерниками. Писал он не пером и чернилами, а карандашом через копирку – сразу в двух экземплярах. Следствие длилось более полугода. И.В. Обреимов вины за собой не признавал и никаких протоколов не подписывал. Дело на И.В. Обреимова у следователя И.Г. Попкова никак не шивалось. Его и к концу следствия не было. Книга к тому времени в основном была написана. Следователь получил от Ивана Васильевича первый экземпляр и отправил его на рецензию в УФТИ (рецензии оттуда так и не последовало).

Тем не менее вопрос о дальнейшей судьбе И.В. Обреимова был предрешен: лагерь в Котласе без права переписки».

И другой бы смирился с этим положением, но Иван Васильевич Обреимов, несмотря на то, что душу нестерпимо тяготило сознание несправедливой изоляции, все же не сломился духовно.

«Поместили его вместе с уголовниками, с которыми И.В. Обреимову удалось построить не только безопасные отношения, но отношения взаимопомощи – они передавали на волю письма Ивана Васильевича.

Обреимов рассказывал, что авторитет он заслужил за талант рассказчика: он читал наизусть Некрасова и Пушкина, пересказывал Тургенева и Диккенса, множество детективных историй (и с тех пор терпеть не мог детективы) – память его была неисчерпаема.

Другой заслугой И.В. Обреимова перед уголовниками оказалось спасение их жизней при погрузке баржи с лесом, когда покотившиеся бревна неизбежно должны были завалить и покалечить людей: быстро и точно подставив плечо, Иван Васильевич изменил скат в безопасном направлении. В свою очередь, соседи-уголовники показали секреты землекопной работы, которая была основной в лагере...

Авторитет И.В. Обреимова среди уголовников помог ему переправить на волю второй экземпляр книги\*, которую он дописывал в лагере».

---

\* Рукопись книги И.В. Обреимова «О приложениях френелевой дифракции для физических и технических приложений» была передана непосредственно в руки А. Ф. Иоффе человеком, фамилию которого история не сохранила. А. Ф. Иоффе и П. Л. Капица написали на нее рецензию. В конце 1945 г. книга была издана в издательстве АН СССР. В 1946 г. И.В. Обреимов получил Сталинскую премию 1-й степени.

В то же время и советская научная общественность не стояла в стороне от этих событий. Примером тому может служить ходатайство за подписью академика Петра Леонидовича Капицы.

7 июля 1940 г., Москва

Товарищ Молотов,

Мне показали письма, которые написаны Вам об арестованном профессоре И.В. Обреимове (б. член-корр. Академии наук). Этот случай безусловно заслуживает большого внимания, но в этих письмах я не нашел самого главного. Поэтому, если Вы решите обратить внимание на судьбу Обреимова, то мое письмо может быть Вам полезно.

Я знаю Обреимова лет 20, и хорошо, так хорошо, как можно знать людей этого типа. Если бы был жив Ломброзо, он лучше сумел бы дать его характеристику, так как Обреимов — это типичный объект для его теории.

В физике Обреимов сделал замечательные вещи, они поражают своей своеобразностью. Многие из его точек зрения и теорий еще не поняты, но если они окажутся правильными, они будут гениальными. Самое трудное понять мысли Обреимова, уж очень они парадоксальны. Он и сам говорит: «Не люблю людей с ясной мыслью, они ничего нового не выдумывают». Если бы не ряд ценных и конкретных результатов, которых никто отрицать не может, Обреимов считался бы если не сумасшедшим, то очень большим чудачком.

Вот, например, он выдумал, осуществил и внедрил метод для определения оптических свойств стекла, пока оно еще варится в тигле. Задача очень важная для оптиков и на первый взгляд неосуществимая, Обреимов ее решил гениально просто, и благодаря так называемому «методу Обреимова» наша оптическая промышленность может варить стекло лучше всех.

По делу Обреимова я думаю следующее.

1. Что мало вероятно, что Обреимов политический преступник. Самое вероятное, что своими нескончаемыми парадоксами он довел следователя и работников НКВД до состояния полного озадачения, и для верности его просто посадили. Уж если его и сажать, то правильнее было бы не в дома НКВД, а в дома Наркомздрава.
2. После ареста Обреимов работал научно, а теперь, говорят, его сделали грузчиком в Котласе.
3. Если это правда, то это надо скорее исправить, а то потом нам всем будет за это стыдно.
4. Если диагноз НКВД не подлежит пересмотру, то все же надо дать возможность Обреимову научно работать над чем он хочет и доводить его работу до публикации, это в интересах всей науки.

Ваш П. Капица.

Накануне Великой Отечественной войны член-корреспондент Академии наук СССР И.В. Обреимов наконец-то обрел долгожданную свободу. Прочитав по этому поводу уникальный архивный документ — письмо тогдашнего начальника лагеря, где несправедливо отбывал срок И.В. Обреимов:

«Летом 1940 года через Котлас проходили на Север эшелоны з/к поляков. Это, в основном, были жандармы, дефензива, осужденные по разным статьям. Всего прошло 11 тысяч человек. Среди них была только одна женщина.

По особому заданию их всех надо было переотправить на Север (Печора)...

Между прочим, было указание о тщательном порядке и соблюдении санитарного состояния. Для наведения чистоты была выделена группа заключенных с № подразделения.

*В группе уборщиков запечатлелся з/к, в котором можно было угадать интеллигента.*

Поручив секретарю выяснить фамилию этого з/к — запущенного и оборванного человека, я вскоре забыл за массой дел. Затем все же вызвал его для разговора. Он был очень напуган, но я его успокоил и мы свободно разговорились. *Он сказал, что по специальности он садовник.* Такой человек был нам очень нужен.

Затем через цензуру я установил, что ему посылают письма крупные ученые-физики...

*Оказалось, что это не садовник, а видный ученый физик, чл.-корр. АН и т.д.*

Побывав на подразделении, я еще раз увидел Обреимова, когда он производил уборку барака.

Вообще его, как нежелательный элемент, должны были отправить этапом на Север.

Просмотрев списки, я приказал Обреимова вычеркнуть, а начальника подразделения за обман снял.

В то же время я послал шифр Берия, в котором сообщал, что мы имеем дело с крупнейшим ученым и просил указания о порядке дальнейшего содержания его в лагере. Впредь до получения указания я предложил Обреимову продолжать заниматься наукой. От т.н. «общих» работ освободили. Вскоре получили распоряжение отправить спецконвоем в Москву в распоряжение МВД СССР.

*В Москве во внутренней тюрьме на Лубянке Обреимову дали возможность закончить труд, за который ему присвоили звание лауреата и премию в 200 т. р., а затем освободили.*

Затем я потерял его из виду. Не он один на моем пути.

Впоследствии я был зам. н-ка главка в другом министерстве.

Обреимов после освобождения уже жил в Москве с семьей и разыскал меня по телефону. Я был очень рад за него. Встреча состоялась в гостинице «Москва» в кругу его семьи...». (Это письмо Иван Васильевич хранил до самой смерти в своём сейфе.)

Далее судьбу первого директора УФТИ можно проследить по краткой автобиографии, составленной им 24 июля 1943 года для канцелярии Академии наук СССР: «По освобождении, в сентябре 1941 г., эвакуировался из Харькова в г. Уфу, где работал до ноября 1942 г. в Институте физической химии АН УССР

им. Л. В. Писаржевского (руководимом академиком А.И. Бродским). В ноябре 1942 г. перешел на работу в г. Йошкар-Ола, в Государственный оптический институт... В 1933 г. был избран членом-корреспондентом Академии наук СССР».

### Позиция

Своеобразие мышления проявляется также и в жизненных отношениях И. В. Обреимова.  
П. Л. Капица

По окончании войны судьба предоставила первому директору УФТИ уникальный шанс – во второй раз стать во главе УФТИ. Некоторые подробности этого предложения представляется возможным восстановить по конфиденциальному письму Кирилла Дмитриевича Синельникова\*, директора послевоенного УФТИ. Данное письмо стоит процитировать более подробно, так как не случайно оно сохранилось более полувека в семейном архиве академика Бориса Георгиевича Лазарева\*\*.

9 февраля 1944 г.

Дорогой Борис Георгиевич!

Произошли большие и мало приятные для меня изменения. Так как я хотел бы, чтобы между Вами и мной с самого начала не было политики «тайн Мадридского двора», то я пишу Вам совершенно откровенное, но конфиденциальное письмо...

Я считал, что наилучший выход – это поддержать идею о назначении Обреимова Директором, идею, о которой говорили мне еще в сентябре Богомолец\*\*\* и Палладин\*\*\*\*. Мне казалось, что Иван Васильевич сможет сколотить дружный и сильный коллектив; его научный авторитет и то, что в конце концов, он был создателем УФТИ...

Я форсировал встречу Обреимова с Богомольцем, но результат получился неожиданный – оба остались недовольны друг другом. Единственно, что удалось Богомольцу добиться от него, что он соглашается работать в УФТИ при выполнении некоторых условий. Каковы эти условия – ниже.

Богомолец затем собрал нас (Лейпунский, Вальтер, Курдюмов, Слуцкий, Палладин, Чернышев), сообщил об отказе Обреимова и сказал, что он считает, что директором надо назначать меня... (т.к. Лейпунский зафрахтован Киевом, а Курдюмов Москвой. В общем, я был поставлен пред дилеммой – или соглашаться или «наплевать» на УФТИ и ориентироваться на наш институт №160 в Москве. Я выбрал первое, так как был и остался патриотом УФТИ...

Теперь несколько слов (совершенно конфиденциально) о требованиях Обреимова. В институте будет 4 отдела: а) ядро и электроника; б) электромагнитные колебания; в) твердое тело и криогенная лаборатория; г) теоретический отдел; т.е. говоря прямо – криогенная лаборатория при Вашем руководстве (здесь и далее подчеркнуто К.Д. Синельниковым – прим. А. Т.) включается в большой отдел твердого тела, куда входят: оптические свойства, механические свойства (Гарбер), низкие температуры (Вы) и рентгеновская лаборатория (?). Условие вызывает опасения, – согласитесь ли Вы работать научным руководителем криогенной лаборатории при наличии Верховного командования Обреимова? Я совершенно не знаю, каковы Ваши взаимоотношения с ним. Если они дружеские, то это не опасно, если нет, то соглашаться с этим планом нельзя.

Я не могу допустить, чтобы с самого начала работы по восстановлению были бы недовольство и неясности наших основных работников. Поэтому, обдумав ситуацию, немедленно телеграфируйте (Москва, Можайское шоссе 11/3, кв.200, мне) или «согласен слиянием», или «категорически возражаю». Откровенно говоря, наличие 4-х отделов с отдельными лабораториями (у меня лаборатория технической электроники, у Слуцкого – возможна отдельная лаборатория Брауде) очень упрощает структуру, делает институт более целеустремленным, но эта реорганизация, как я говорил, может быть полезна только при наличии хороших взаимоотношений...

Судя по всему не импонировало Ивану Васильевичу Обреимову и предложение Абрама Федоровича Иоффе: «После войны А.Ф. Иоффе пригласил меня перейти работать в его институт, но я уже дал согласие

\* Синельников Кирилл Дмитриевич (1901-1966) – физик-экспериментатор, академик АН УССР (1948). В 1924-1930 гг. работал в Ленинградском физико-техническом институте, с 1930 г. – в Украинском (Харьковском) физико-техническом институте (с 1944 по 1965 г. – директор). Академик Игорь Васильевич Курчатов – сокурсник К.Д. Синельникова по Таврическому университету, соратник по Ленинградскому физико-техническому институту, в 1926 г. женился на его сестре. Из автобиографии И.В. Курчатова: «В состав моей семьи входит жена, Марина Дмитриевна Синельникова, дочь земского врача, которая занимается домашним хозяйством и общественной деятельностью в Ленинградском физико-техническом институте».

\*\* Лазарев Борис Георгиевич (1906-2001) – физик-экспериментатор, академик АН УССР (1951). С 1930 по 1932 г. работал в Ленинградском физико-техническом институте, в 1932-1937 гг. – в Уральском физико-техническом институте, с 1937 г. – в Украинском (Харьковском) физико-техническом институте.

\*\*\* Богомолец Александр Александрович (1881-1946) – патофизиолог, академик АН УССР (1929), академик АН СССР (1932), академик АН БССР (1939), академик АМН (1944), президент АН УССР (1930-1946).

\*\*\*\* Палладин Александр Владимирович (1885-1972) – биохимик, академик АН УССР (1929), академик АН СССР (1942), академик АМН (1944), президент АН УССР (1946-1962). Организатор и директор (с 1925) Украинского биохимического института (с 1931 Институт биохимии АН УССР).

А.Н. Несмеянову\* перейти к нему, так как, по моему мнению, мое место было среди химиков... Моим решением Абрам Федорович был недоволен».

В 1944-1954 гг. И.В. Обреимов работает в Институте органической химии АН СССР, в 1954-1965 гг. – в Институте элементоорганических соединений АН СССР, а с 1965 г. – в Институте общей и неорганической химии АН СССР.

Действительным членом Академии наук СССР И.В. Обреимов был избран в 1958 году\*\*.

Первому директору УФТИ и ничто человеческое не было чуждо. «Женат два раза: первый – на Екатерине Александровне Пузино, в 1919 г., от которой имею дочь Лию; второй – на Александре Ивановне Прейсфрейнд, от которой имею дочь Наташу и сына Васю, и кроме того, приемную дочь Женю».

А в часы досуга его душа лежала к любимым цветам. Рассказывают, что именно благодаря хлопотам Ивана Васильевича Обреимова на территории УФТИ был заложен уникальный сад-парк. Помогал в озеленении института также и Петр Леонидович Капица, присылая из далекой Англии семена дикорастущих растений.

На склоне лет Иван Васильевич подготовил к печати, но не успел, к сожалению, опубликовать рукопись книги «Растения с красивыми и интересными плодами», которая состояла из 124 машинописных страниц и 8 акварельных рисунков, выполненных им лично.

Кроме того, как отмечают его современники, Иван Васильевич Обреимов был исключительно отзывчивым и доступным человеком.

И вот лишь один пример его поддержки: «После войны Обреимов стал создавать у себя в лаборатории группу радиоспектроскопии. Он взял в нее несколько молодых людей, только что окончивших радиотехнический институт, в том числе и моего собеседника.

Вскоре... выяснилось, что по небрежности отдела кадров на него не подали вовремя заявку на бронь и он попал под призыв. Пытаясь сохранить своего сотрудника, Иван Васильевич в конце концов дошел до президента академии А.Н. Несмеянова.

И тут выяснилось, что решить судьбу молодого ученого может только министр обороны Н.А. Булганин. Иван Васильевич попросив у Несмеянова разрешения воспользоваться его «вертушкой», примерно в восемь часов вечера засел за телефон и к полуночи дозвонился до А.Н. Несмеянова. Объяснив ему ситуацию, Иван Васильевич получил заверение, что сотрудник от призыва будет освобожден, что в дальнейшем и произошло. Выручая людей, Обреимов не стеснялся добираться до самых верхов...

Выброшенного из той или иной системы человека (вспомним хотя бы историю с Ландау) он помещал в доброжелательные условия, и человек приходил в себя, расправлял крылья».

К тому же Ивана Васильевича Обреимова отличала гуманность и удивительная скромность к своим заслугам. В нем не было и тени высокомерия. Особенно наглядно эта черта проявлялась в отношении к научным результатам своих учеников и коллег. Он никогда не соглашался на соавторство, если не был непосредственным участником данного исследования. Принимал лишь выражение признательности в конце научной статьи «за руководство» или «за ценные советы». «Рассказывают, что когда к семидесятилетнему юбилею планировалось его награждение орденом Ленина, то документы попали к инструктору райкома партии, сравнительно молодому человеку, по специальности химику. Тот просмотрел их и удивительно воскликнул: «Пятьдесят публикаций и орден Ленина? Да у меня триста работ!».

В 1974 году исполнилось 80 лет со дня рождения Ивана Васильевича Обреимова. К юбилею директора-организатора УФТИ харьковчане приурочили торжественное заседание объединенного ученого совета тех украинских институтов, у истоков которых стоял УФТИ, и праздничный концерт в Доме ученых, где в честь юбиляра звучали его любимые классические произведения.

Иван Васильевич был настолько растроган радужием харьковчан, что вернувшись в Москву незамедлительно написал Б.Г. Лазареву: «Это было чудесно, не припомню, чтобы у кого-либо из академиков юбилей был таким замечательным праздником». И к тому же не без гордости заметил: «Дорогой Борис Георгиевич, посылаю вам копию адреса, который я получил от Президиума АН СССР. Как видите, в нем написано, что из Харькова кое-что вышло. Посылаю Вам, так как это документ...».

В канун 90-летия УФТИ стоит процитировать текст вышеупомянутого адреса, за подписью тогдашнего президента АН СССР академика М.В. Келдыша и вице-президента АН СССР академика Ю.А. Овчинникова:

Глубокоуважаемый Иван Васильевич!

Президиум Академии наук СССР сердечно поздравляет Вас с восьмидесятилетием со дня рождения.

Шестьдесят лет своей жизни Вы посвятили науке, которой отдаете всю свою энергию, знания, ум и сердце.

Ваш личный жизненный путь тесно связан со становлением физики в нашей стране. Ученик Д.С. Рождественского, один из первых сотрудников Государственного оптического института, Вы очень много сделали для развития отечественной оптоэлектроники. Соратник А.Ф. Иоффе, Вы положили начало изучению электронных состояний в

\* Несмеянов Александр Николаевич (1899-1980) – химик-органик, академик (1943), президент АН СССР (1951-1961), директор Института элементоорганических соединений АН СССР (с 1954)

\*\* Н.В. «Я потому стал академиком, что никогда не боялся показаться дураком» /И. В. Обреимов/.

молекулярных кристаллах.

Вы являетесь основателем и первым руководителем Харьковского физико-технического института, ставшего одним из международных центров физических исследований...»

Прошли годы...

И ныне Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт» НАН Украины также достойно отмечает свой 90-летний юбилей.

Так что из УФТИ,  
следуя словам Ивана Васильевича Обреимова,  
*кое-что вышло (sic!).*

blank line)

(blank line)

**PACS:** Here you must specify PACS codes

(blank line)

## INSTRUCTIONS FOR PREPARING MANUSCRIPT (TITLE)

(blank line)

**N.N. Author<sup>1</sup>, N.N. Co-author(s)<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>*Affiliation*

<sup>2</sup>*Affiliation (if different from Authors affiliation)*

*e-mail: [corresponding\\_authors@mail.com](mailto:corresponding_authors@mail.com)*

Received 14 January 2018

(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 1800 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 <sup>14</sup>C, <sup>3</sup>H, <sup>60</sup>Co, etc.

Наукове видання

**СХІДНО-ЄВРОПЕЙСЬКИЙ ФІЗИЧНИЙ ЖУРНАЛ**

**Том 5 Номер 3**

**EAST EUROPEAN JOURNAL OF PHYSICS**

**Volume 5 Number 3**

Збірник наукових праць  
англійською, українською, російською мовами

Коректор – Коваленко Т.О.  
Технічний редактор – Гірник С.А.  
Комп'ютерне верстання – Гірник С.А.

Підписано до друку 20.09.2018. Формат 60×84 /8. Папір офсетний.

Друк ризографічний.

Ум. друк. арк. 10,7. Обл.-вид. арк. 11

Тираж 100 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