

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера
Сибирского отделения Российской академии наук

На правах рукописи

Соколова Евгения Олеговна

**ИССЛЕДОВАНИЕ И ОПТИМИЗАЦИЯ ТОНКОЙ ЛИТИЕВОЙ
МИШЕНИ ДЛЯ ГЕНЕРАЦИИ НЕЙТРОНОВ**

1.3.18. Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель
доктор физико-математических наук
Таскаев Сергей Юрьевич

Новосибирск – 2022

Оглавление

	Стр.
ВВЕДЕНИЕ.....	4
ГЛАВА 1. НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩАЯ МИШЕНЬ ДЛЯ БОР-НЕЙТРОНОЗАХВАТНОЙ ТЕРАПИИ	10
1.1 ТРЕБОВАНИЯ К НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩЕЙ МИШЕНИ.....	10
1.2 ОБЗОР НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩИХ МИШЕНЕЙ	14
1.2.1 Нейтроногенирующая мишень с жидким литием.....	16
1.2.2 Вращающаяся нейтроногенирующая мишень с твердым литием.....	19
1.2.3 Стационарная нейтроногенирующая мишень с твердым литием	22
1.3 НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩАЯ МИШЕНЬ УСКОРИТЕЛЬНОГО ИСТОЧНИКА ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ИЯФ СО РАН.....	26
ГЛАВА 2. РАДИАЦИОННЫЙ БЛИСТЕРИНГ МЕДИ С ТОНКИМ СЛОЕМ ЛИТИЯ	32
2.1 ОСОБЕННОСТИ ИССЛЕДОВАНИЯ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА	34
2.2 РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ	39
2.2.1 Экспериментальные результаты. Серия I	39
2.2.2 Экспериментальные результаты. Серия II.....	55
2.2.3 Экспериментальные результаты. Серия III	61
2.2.4 Экспериментальные результаты. Серия IV	72
2.3 ВЫВОДЫ ГЛАВЫ 2	75
ГЛАВА 3. ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ПОВЕРХНОСТИ ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПРОТОНАМИ.....	78
3.1 ИЗМЕРЕНИЕ СПЕКТРА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ.....	78
3.2 ДИАГНОСТИКА РАЗМЕРА И ПОЛОЖЕНИЯ ПУЧКА ПРОТОНОВ ПО ЭФФЕКТУ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ.....	82
3.3 ВЫВОДЫ ГЛАВЫ 3	86

ГЛАВА 4. МЕТОД <i>IN SITU</i> ИЗМЕРЕНИЯ ТОЛЩИНЫ СЛОЯ ЛИТИЯ.....	87
4.1 ОБЗОР МЕТОДОВ ИЗМЕРЕНИЯ ТОЛЩИНЫ СЛОЯ ЛИТИЯ.....	88
4.2 ОПИСАНИЕ МЕТОДА ИЗМЕРЕНИЯ ТОЛЩИНЫ СЛОЯ ЛИТИЯ ПО ВЫХОДУ Υ-КВАНТОВ	92
4.3 РЕАЛИЗАЦИЯ МЕТОДА ИЗМЕРЕНИЯ ТОЛЩИНЫ СЛОЯ ЛИТИЯ	95
4.4 РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ	98
4.5 ОПТИМИЗАЦИЯ НАПЫЛЕНИЯ ЛИТИЯ	101
4.6 ВЫВОДЫ ГЛАВЫ 4	109
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	110
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.....	113

Введение

По данным Всемирной организации здравоохранения распространенность онкологических заболеваний и смертность от них неуклонно растут. Если в 2018 г. у 18,1 млн человек был диагностирован рак и 9,6 миллиона человек умерли от этой болезни, то к 2040 г. прогнозируется двукратное увеличение этих показателей [1]. Разработка лекарств и методов лечения злокачественных опухолей – важная и до сих пор не решенная научная задача.

Одной из перспективных методик лечения злокачественных опухолей рассматривается бор-нейтронозахватная терапия (БНЗТ) [2, 3] – избирательное уничтожение клеток опухоли путем накопления в них стабильного изотопа бор-10 и последующего облучения нейтронами. В результате поглощения нейтрона бором происходит ядерная реакция с большим выделением энергии в клетке опухоли, что приводит к ее гибели.

Методика БНЗТ, предложенная в 1936 г. [4], прошла стадию клинических испытаний на исследовательских ядерных реакторах [5-8], на ускорительных источниках нейтронов [9, 10] и вступает в стадию клинического применения. С 2020 г. в двух японских клиниках, оснащенных циклотроном с энергией протонов 30 МэВ и бериллиевой мишенью, приступили к лечению больных. Еще в одной японской клинике, оснащенной линейным ускорителем с энергией протонов 8 МэВ и бериллиевой мишенью, с ноября 2021 г. приступили к доклиническим исследованиям. Действительно широкое внедрение БНЗТ может быть достигнуто с применением протонных ускорителей с меньшей энергией, но с большим током, и литиевой мишени, обеспечивающих наилучшее качество пучка нейтронов. К настоящему времени несколькими группами исследователей решена проблема создания протонных ускорителей с энергией около 2,5 МэВ и током 10 мА. **Актуальной задачей** является разработка литиевой мишени, обеспечивающей

длительную стабильную генерацию нейтронов при ее облучении мощным пучком протонов.

Степень разработанности темы исследования. Литиевая мишень идеальна для применения в БНЗТ из-за низкой энергии генерируемых нейтронов и их большого выхода в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, но из-за механических, химических и термических свойств металлического лития считалась плохим кандидатом [11]. Также считалось, что имплантация протонов в металлическую подложку, на которую нанесен слой лития, достаточно быстро приводит к появлению развитой поверхности металла (блистеров) и делает мишень непригодной к эксплуатации [12-23]. В ИЯФ СО РАН предложена и разработана тонкая литиевая мишень¹, представляющая собой слой металлического лития, нанесенного на медную подложку, охлаждаемую водой [24]. Литий обеспечивает генерацию нейтронов в пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, медная подложка предназначена для поглощения протонов и эффективного теплоотвода. Тонкая литиевая мишень по сравнению с толстой снижает нежелательную дозу γ -излучения без уменьшения выхода нейтронов [25].

Целью работы является исследование тонкой литиевой мишени для генерации нейтронов в пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, а именно: изучение влияния радиационного блистеринга меди при имплантации протонов на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени, изучение люминесценции лития при облучении протонами и разработка неразрушающего метода *in situ* измерения толщины литиевого слоя.

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

1. Изучить влияние радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени.

¹ Термин “тонкая литиевая мишень” означает, что протоны проходят слой лития и поглощаются в подложке, на которую нанесен литий, “толстая” – протоны поглощаются в литии.

2. Изучить люминесценцию лития при облучении протонами и разработать метод измерения и контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени.

3. Разработать неразрушающий метод *in situ* измерения толщины литиевого слоя и оптимизировать напыление лития для получения однородного слоя.

4. Определить процессы и условия, приводящие к деградации выхода нейтронов из тонкой литиевой мишени.

Научная новизна работы заключается в следующем.

Установлено, что радиационный блистеринг меди не приводит к деградации выхода нейтронов из тонкой литиевой мишени.

Установлено, что водород, доставленный пучком протонов в приповерхностный слой меди, не вступает в химическое соединение с литием, что могло бы приводить к падению выхода нейтронов.

Предложен и реализован метод измерения и контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени по регистрации люминесценции поверхности литиевой мишени под действием протонов.

Предложен и реализован метод измерения толщины литиевого слоя путем сравнения интенсивности излучения 478 кэВ фотонов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ из исследуемого литиевого слоя и из толстого при их облучении протонами.

Основная **теоретическая и практическая значимость** диссертационной работы состоит в том, что получены новые знания о литиевой мишени для генерации нейтронов, а именно: 1) радиационный блистеринг меди не приводит к деградации выхода нейтронов из тонкой литиевой мишени; 2) при облучении пучком протонов литий проникает в медь, и данный процесс следует учитывать при выборе толщины литиевого слоя; 3) водород, доставленный пучком протонов в приповерхностный слой меди, не вступает в химическое соединение с литием, что могло бы приводить к падению выхода нейтронов. Предложены, разработаны и внедрены метод измерения и контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени по регистрации люминесценции поверхности

литиевой мишени под действием протонов и неразрушающий метод *in situ* измерения толщины литиевого слоя. Оптимизирована система напыления лития для получения однородного литиевого слоя.

Полученные знания использованы при изготовлении ускорительного источника нейтронов для центра БНЗТ в г. Сямынь (провинция Фуцзянь, Китай) [27] – первой в Китае и одной из первых шести клиники БНЗТ в мире, и используются при изготовлении источников нейтронов для Национального центра адронной терапии в области онкологии в Павии (Италия) и для Национального медицинского исследовательского центра онкологии им. Н.Н. Блохина в Москве.

Методологической основой диссертационной работы являются экспериментальные методы исследования, включая численное моделирование и экспериментальное исследование литиевой мишени, и применение метода сравнения для выявления сходств и различий.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Радиационный блистеринг меди при имплантации протонов не влияет на выход нейтронов в пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из литиевого слоя, нанесенного на медь.

2. Обнаружена люминесценция поверхности литиевой мишени под действием протонов. Регистрация люминесценции обеспечивает измерение и контроль положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени.

3. Предложена и реализована методика *in situ* измерения толщины лития путем сравнения интенсивности излучения фотонов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ из исследуемого литиевого слоя и из толстого при их облучении протонами. Использование пучка протонов с энергией 1,85 МэВ, ниже порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, обеспечивает измерение пространственного распределения толщины литиевого слоя вплоть до 100 мкм без его повреждения.

4. Применение предложенного метода измерения толщины литиевого слоя мишени и регистрация люминесценции поверхности литиевой мишени

позволили оптимизировать напыление лития для получения однородного по толщине слоя лития.

5. Тонкая литиевая мишень, стойкая к радиационному блистерингу и однородная по толщине, оптимальна для применения в источнике эпитепловых нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей.

Степень достоверности и апробация диссертации. Результаты, лежащие в основе диссертационной работы, получены с применением надежных экспериментальных и теоретических методов исследования. Достоверность полученных результатов подтверждена длительной эксплуатацией литиевой мишени на ускорительном источнике нейтронов ИЯФ СО РАН и генерацией нейтронов в центре БНЗТ г. Сямынь.

Результаты исследований, лежащие в основе диссертации, лично докладывались автором и обсуждались на 5 международных и 1 российской конференциях [33, 35-41]: на Рабочем совещании по литиевой мишени для БНЗТ (Онна-Сон, Япония, 2017), на двух Международных школах молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Киото, Япония, 2017; Хельсинки, Финляндия, 2019), на Азиатском форуме ускорителей и детекторов (Новосибирск, Россия, 2021), на 27-й Всероссийской конференции по ускорителям заряженных частиц (Алушта, Россия, 2021), на 19-м Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии (Гранада, Испания, 2021). Доклад автора на 19-м Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии отмечен премией “Fairchild Award”.

Результаты работы вошли в научно-квалификационную работу аспиранта [99], которая успешно защищена в 2022 году.

Исследования поддержаны Российским научным фондом (Соглашение № 19-72-30005, 2019-2022), компанией TAE Technologies, Inc., США (контракт № 17-132, 2017-2020), персональным грантом Российского фонда фундаментальных исследований (Договор № 19-32-90119, 2019-2022) и персональной стипендией Президента РФ молодым ученым и аспирантам (СП-2737.2022.4, 2022-2024).

Личный вклад автора в получении научных результатов, лежащих в основе диссертации, является определяющим. При ключевом участии автора проведены экспериментальные исследования по изучению радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из литиевого слоя, нанесенного на медь. Автор лично производил напыление литиевого слоя требуемой толщины на исследуемые образцы, проводил исследование образцов на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами, готовил образцы и исследовал их микроструктуру на растровом электронном микроскопе. При ключевом участии автора исследована люминесценция поверхности литиевой мишени под действием протонов и разработана методика измерения положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени. Автором предложен и реализован оригинальный *in situ* метод неразрушающего измерения толщины лития. Автором модифицирована система напыления лития для получения однородного по толщине литиевого слоя. Автором написаны соответствующие разделы в опубликованных статьях.

По теме диссертации опубликовано 6 работ, из них 5 в рецензируемых научных журналах [28-32] и 1 в трудах конференции [33] из списка, рекомендованного ВАК. В работах [28, 29] изложены результаты исследования блистеринга и его влияния на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени, в работах [30, 31] приведено описание предложенного и реализованного метода измерения толщины литиевого слоя, в работах [32, 33] изложены результаты исследования и применения люминесценции. Все работы проиндексированы в базе данных Скопус (SCOPUS), все 5 работ в рецензируемых журналах – еще и в базе данных Сеть науки (Web of Science Core Collection). По теме диссертации получен патент на изобретение [34].

Глава 1.

Нейтроногенерирующая мишень для бор-нейтронозахватной терапии

1.1 Требования к нейтроногенерирующей мишени

Бор-нейтронозахватная терапия является одной из форм бинарной лучевой терапии злокачественных опухолей. Для достижения терапевтического эффекта в клетках опухоли накапливают изотоп бор-10 и затем опухоль облучают потоком тепловых нейтронов. В результате захвата нейтрона атомным ядром ^{10}B происходит ядерная реакция $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ с выделением 2,79 МэВ энергии. В 6,1 % случаях выделившаяся энергия распределяется между ядром ^7Li и α -частицей, в 93,9 % ядро лития испускается в возбужденном состоянии и выпускает γ -квант с энергией 478 кэВ. Ядро ^7Li с энергией 0,84 МэВ и α -частица с энергией 1,47 МэВ быстро тормозятся в тканях организма (со скоростями 162 и 196 кэВ·мкм⁻¹ соответственно) и всю энергию высвобождают на длине 5,2 и 7,5 мкм, что сравнимо с размером клетки млекопитающего. Скорость торможения γ -кванта намного меньше, 0,3 кэВ·мкм⁻¹, поэтому он выделяет энергию в бóльшей области.

Таким образом, бóльшая часть энергии от ядерной реакции $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, а именно 84 %, высвобождается внутри опухолевой клетки. Следовательно, селективное накопление бора в опухоли и последующее облучение нейтронами ведет к избирательному уничтожению клеток опухоли при относительном сохранении здоровой ткани.

В 2001 г. Международное агентство по атомной энергии опубликовало руководство для проведения бор-нейтронозахватной терапии [42]. В общем виде требования для нейтронного пучка представлены в таблице 1.

Таблица 1 – Характеристики нейтронного пучка, рекомендованные для БНЗТ Международным агентством по атомной энергии

Характеристика пучка	Рекомендованное значение
Плотность потока эпитепловых (0,5 эВ-10 кэВ) нейтронов	$\geq 10^9 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$
Доза быстрых ($> 10 \text{ кэВ}$) нейтронов	$\leq 2 \cdot 10^{-13} \text{ Гр} \cdot \text{см}^2 \text{ на нейтрон}$
Доза γ -излучения	$\leq 2 \cdot 10^{-13} \text{ Гр} \cdot \text{см}^2 \text{ на нейтрон}$
Отношение потока тепловых нейтронов к эпитепловым	$\leq 0,05$
Отношение нейтронов, направленных вперед, ко всем нейтронам	$\geq 0,7$

Клинические испытания методики БНЗТ, проведенные на экспериментальных ядерных реакторах [5-8], продемонстрировали ее перспективность в лечении ряда опухолей. Широкое внедрение методики БНЗТ в клиническую практику возможно с использованием ускорительных источников нейтронов, которые по сравнению с ядерными реакторами компактны, безопасны и могут быть установлены в онкологических клиниках.

Для генерации нейтронов рассматривают следующие четыре реакции [11]: ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ (энергия порога генерации нейтронов 1,882 МэВ), ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ (энергия порога генерации нейтронов 2,057 МэВ), ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$, ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$. Характеристики реакций представлены в таблице 2. Литиевая мишень идеальна для применения в БНЗТ из-за низкой энергии генерируемых нейтронов и их большого выхода, но из-за механических, химических и термических свойств металлического лития считалась плохим кандидатом [11]. Также считалось, что имплантация протонов в металлическую подложку, на которую нанесен слой лития, достаточно быстро приводит к появлению развитой поверхности металла (блистеров) и делает мишень непригодной к эксплуатации [12-23]. Использование бериллия или углерода рассматривают в качестве альтернативы, поскольку эти материалы проще в обращении. Однако для сопоставимого выхода нейтронов реакции с бериллием и углеродом требуют в разы большую энергию протонов. Как следствие, энергия

генерируемых нейтронов выше, и для формирования терапевтического пучка нейтронов требуется более протяженный замедлитель, применение которого приводит к уменьшению плотности потока нейтронов и нежелательному уширению спектра нейтронов в терапевтическом пучке. Ввиду всего сказанного, при создании “идеального” источника эпитепловых нейтронов для БНЗТ необходимо использовать реакцию ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$.

Таблица 2 – Характеристики реакций генерации нейтронов, рассматриваемые для БНЗТ

Реакция	Энергия протонов (МэВ)	Выход нейтронов ($\text{н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{мА}^{-1}$)	$E_{\text{ср}}$ нейтронов при 0° (МэВ)	$E_{\text{макс}}$ нейтронов (МэВ)	$T_{\text{плавления}}$ ($^\circ\text{C}$)	Теплопроводность ($\text{Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$)
${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$	2,5	$8,9\cdot 10^{11}$	0,55	0,786	181	85
${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$	4,0	$11,5\cdot 10^{11}$	1,06	2,12	1287	201
${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$	1,5	$2,17\cdot 10^{11}$	2,01	5,81	1287	201
${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$	1,5	$1,81\cdot 10^{11}$	1,08	6,77	3550	230

Для того, чтобы создать оптимальную литиевую мишень, необходимо соблюсти следующие требования [43]:

1. Литиевый слой должен быть тонким, таким, чтобы протоны тормозились в нем до порога генерации нейтронов. Это позволяет без уменьшения выхода нейтронов уменьшить нежелательный сопутствующий поток 478 кэВ фотонов в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и уменьшить температуру поверхности лития;

2. Литиевый слой должен быть из чистого металлического лития для максимального выхода нейтронов. Выход нейтронов из гидрида, оксида и фторида лития меньше, чем из чистого лития, в 1,43, 2 и 3,3 раза соответственно;

3. Литиевый слой должен находиться в твердом состоянии для предотвращения распространения по установке паров лития и образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7;

4. Подложка, на которую напыляют литиевый слой, должна быть тонкой. Это позволит поместить оптимальный замедлитель максимально близко к месту генерации нейтронов и сформировать лучший по качеству терапевтический пучок нейтронов;

5. Подложка должна быть интенсивно охлаждаемой, чтобы поддерживать литиевый слой в твердом состоянии при ее нагреве мощным протонным пучком;

6. Подложка должна быть стойкой к радиационным повреждениям;

7. Подложка должна быть простой в изготовлении;

8. Подложка должна быть легкоъемной для ее утилизации после активации.

Требования к нейтроногенерирующей мишени и выбор оптимальной мишени для БНЗТ подробно описаны в докторской диссертации научного руководителя Таскаева С. Ю. [43]. Там же в работе экспериментально продемонстрирована возможность создания литиевой мишени для БНЗТ. Исследованию оптимальных материалов подложки литиевой мишени посвящена кандидатская диссертации Касатова Д. А. [25]. Предметом данной работы является исследование литиевой мишени при длительном ее облучении мощным пучком протонов, а также разработка средств контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени и разработка методики измерения толщины лития для получения однородного по толщине литиевого слоя.

1.2 Обзор нейтроногенерирующих мишеней

На данный момент в мире насчитывается 24 проекта БНЗТ с использованием ускорителей [44]; их основные характеристики представлены в таблице 3. В десяти из них генерация нейтронов происходит в реакции ${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$. В CNEA (Буэнос-Айрес, Аргентина) для генерации нейтронов предполагают использовать реакцию ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$, в Университете Турина (Италия) – реакцию $\text{Pb}(\gamma,n)\text{Pb}$. В остальных проектах применяют реакцию ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Из-за таких особенностей лития, как низкая температура плавления ($180,54\text{ }^\circ\text{C}$), низкая теплопроводность (при комнатной температуре $85\text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{К})$, в жидком состоянии $42,8\text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{К})$), высокая химическая активность и наработка радиоактивного изотопа бериллий-7, созданы несколько концепций литиевых нейтроногенерирующих мишеней.

Рассмотрим основные типы разработанных литиевых нейтроногенерирующих мишеней: мишень с жидким литием, вращающаяся мишень с твердым литием, стационарная мишень с твердым литием.

Таблица 3 – Список актуальных проектов по ускорительной бор-нейтронозахватной терапии

№	Название проекта	Расположение	Тип и параметры ускорителя	Реакция и тип мишени	Текущий статус
1	C-BENS	Куматори, Япония	Циклотрон 30 МэВ, 1 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Эксперименты
2	NeuCure	Фукусима, Япония	Циклотрон 30 МэВ, 1 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Лечение пациентов
3	NeuCure	Осака, Япония	Циклотрон 30 МэВ, 1 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Лечение пациентов
4	NCC CICS-1	Токио, Япония	Линейный 2,5 МэВ, 12 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый Li	I фаза клинических испытаний
5	CICS-1	Токио, Япония	Линейный 2,5 МэВ, 20 мА*	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый Li	Строящийся
6	iBNCT	Цукуба, Япония	Линейный 8 МэВ, 2,8 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Эксперименты
7	nuBeam	Хельсинки, Финляндия	Электростатический 2,6 МэВ, 34 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Вращающийся твердый Li	Ввод в эксплуатацию

№	Название проекта	Расположение	Тип и параметры ускорителя	Реакция и тип мишени	Текущий статус
8	nuBeam	Канагава, Япония	Электростатический 2,6 МэВ, 40 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Вращающийся твердый Li	Ввод в эксплуатацию
9	NeuPex	Сямынь, Китай	Электростатический 2,5 МэВ, 10 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый литий	Ввод в эксплуатацию
10	Alphabeam	Павия, Италия	Электростатический 2,5 МэВ, 10 мА*	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый литий	Строящийся
11	VITA	Новосибирск, Россия	Электростатический 2,3 МэВ, 10 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый литий	Эксперименты
12	VITA	Москва, Россия	Электростатический 2,3 МэВ, 7 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый литий	Строящийся
13	NUANS	Нагоя, Япония	Электростатический 2,8 МэВ, 8 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$ ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Запечатанный литий	Эксперименты
14	SARAF-LiLiT	Явне, Израиль	Линейный 4 МэВ, 2 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Жидкий литий	Эксперименты
15	ESQ	Буэнос-Айрес, Аргентина	Электростатический 1,45 МэВ, 7 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$, ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$	Строящийся
16	D-BNCT01	Пекин, Китай	Линейный 3,5 МэВ, 2,8 мА	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Твердый литий	Эксперименты
17	D-BNCT02	Дунгуань, Китай	Линейный 2,8 МэВ, 20 мА*	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Вращающийся твердый литий	Строящийся
18	A-BNCT	Инчхон, Южная Корея	Линейный 10 МэВ, 1 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Доклинические испытания
19	KIRAMS AB-BNCT	Сеул, Южная Корея	Электростатический 1,45 МэВ, 30 мА*	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Строящийся
20	HF ADNF	Бирменгем, Великобритания	Электростатический 2,6 МэВ, 30 мА*	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Вращающийся твердый литий	Строящийся
21	Legnaro-RFQ	Леньяро, Италия	Линейный 5 МэВ, 30 мА*	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	В разработке
22	E_LibANS	Турин, Италия	Линейный 18 МэВ, 30 мА	$\text{Pb}(\gamma,n)\text{Pb}$	Эксперименты
23	CYCIAE-14B	Пекин, Китай	Циклотрон 14 МэВ, 0,2 мА	${}^9\text{Be}(p,n){}^{10}\text{B}$	Ввод в эксплуатацию
24	Mazu AB-BNCT	Путьян, Китай	Линейный 2,6 МэВ, 15 мА*	${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Вращающийся твердый литий	Строящийся

*Заявленные параметры

1.2.1 Нейтроногенерирующая мишень с жидким литием

Преимущество мишени с жидким литием состоит в том, что теоретически мишень может выдерживать относительно большую плотность мощности протонного пучка и работать долгое время без замены. Однако для поддержания достаточного потока лития нужно большое его количество для заполнения всего объема литиевой системы, системы перекачки лития и теплообменника, что ведет к высокой стоимости и опасности при эксплуатации высокоактивного лития. Жидкий литий обладает высокой химической активностью, а при соединении с водой может быть взрывоопасен [97]. Более того, для поддержания лития в жидкой форме, перекачки, теплообмена, обеспечения пожарной безопасности требуется сложное оборудование. Достаточный и равномерный нагрев и устойчивое течение лития – трудновыполнимые инженерные задачи для систем с жидким литием. Поэтому решение нейтроногенерирующей мишени с жидким литием кажется не самым подходящим для установки в клинике.

Рассмотрим примеры реализации нейтроногенерирующих мишеней с жидким литием.

В центре ядерных исследований Soreq NRC (Явне, Израиль) построен высокомогущный источник нейтронов, где для генерации нейтронов используют жидкий литий [45]. Источник нейтронов применяют для ядерно-астрофизических исследований, материаловедения для термоядерных реакторов и для БНЗТ. Нейтроногенерирующая мишень сконструирована и протестирована с помощью мощного электронного пучка и установлена на сверхпроводящем линейном ускорителе SARAF на Soreq NRC. С помощью мишени с жидким литием и протонного пучка с энергией 1,9 МэВ, током 1,2 мА был получен поток нейтронов $2 \cdot 10^{10}$ н/с со средней энергией 30 кэВ.

Физический принцип мишени SARAF заключается в следующем (рисунок 1): пучок протонов падает прямо на поток жидкого лития, на первых слоях (порядка нескольких микрон) происходит генерация нейтронов. Поскольку энергия протонов близка к пороговой, поток нейтронов кинематически сфокусирован

вперед. Далее протоны тормозятся в литиевой пленке и мощность пучка (порядка $\text{МВт}/\text{см}^3$) с потоком лития передается в теплообменник. Температура жидкого лития в потоке поддерживается около 197°C . Скорость потока жидкого лития 10 м/с .



Рисунок 1 – Принцип работы системы с жидким литием Soreq NRC и фотография жидкого лития, сделанная через диагностическое окно

Вакуумная камера (а) системы с жидким литием (рисунок 2) состоит из порта для протонного пучка с набором из семи колец (с диаметром отверстия 4 см) (А), предназначенных для захвата паров лития во время облучения мишени, смотрового окна (В) и диагностического порта (С). Литиевое сопло (б) трансформирует круговое сечение истекающего лития (диаметром $\sim 2,5\text{ см}$) в пленку толщиной $1,5\text{ мм}$ и шириной 18 мм . Нейтроны выходят через скругленную заднюю стенку вакуумной камеры из тонкой ($0,3\text{ мм}$) нержавеющей стали. По бокам сопла приварены две металлические пластины («ears») для измерения температуры с помощью термопар и для экранирования протонного пучка. Через порт (Е)

подключается дуговой вакуумный насос с титановым геттером, относительно устойчивый к парам лития.

Поток лития прокачивается электромагнитным индукционным насосом между литиевым соплом и теплообменником, где осуществляется масляное охлаждение и захват радиоактивного ${}^7\text{Be}$, образующегося в реакции генерации нейтронов. На рисунке 1 также представлена фотография потока жидкого лития, сделанная через смотровое окно (В).

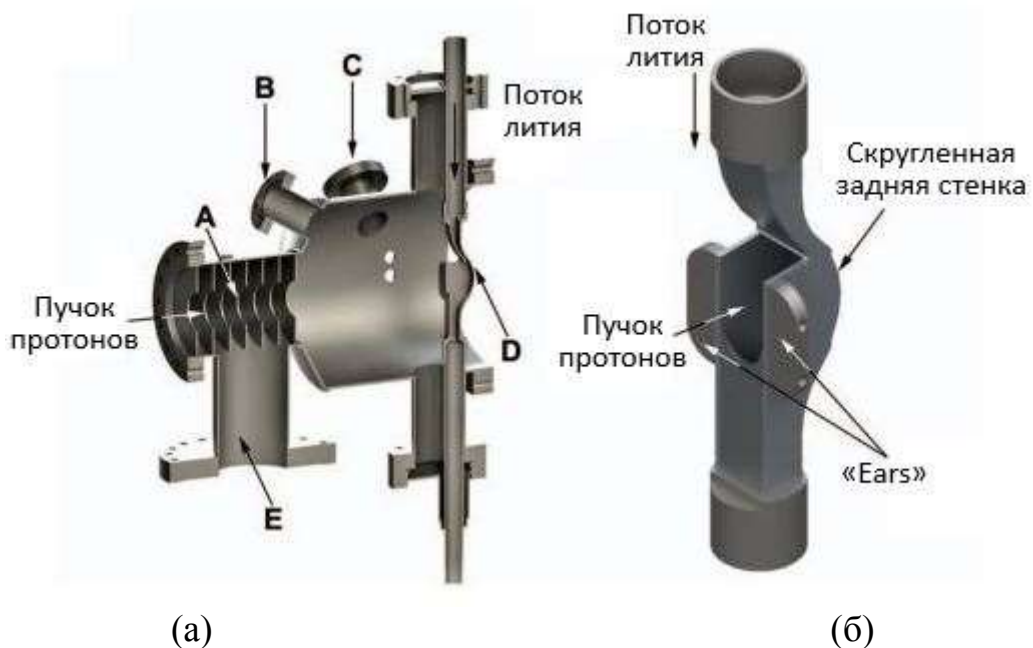


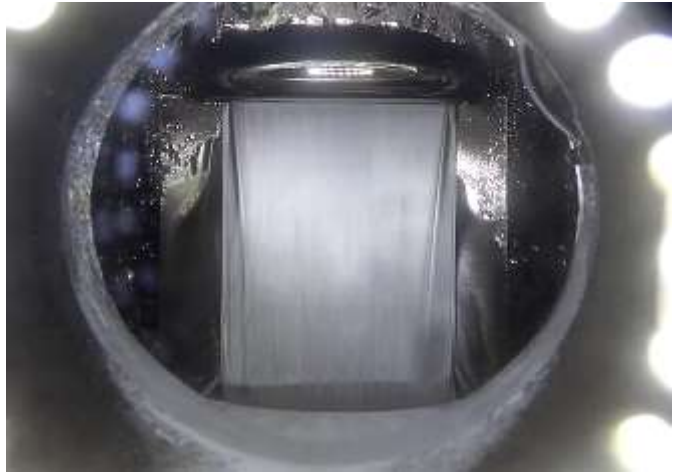
Рисунок 2 – Схематическое изображение системы с жидким литием Soreq NRC (Явне, Израиль): (а) Поперечное сечение вакуумной камеры системы: (А) набор из 7 колец, действующих как ловушка для паров лития, (В) смотровое окно, (С) порт для диагностики пучка протонов, (D) литиевое сопло, (E) порт дугового насоса; (б) литиевое сопло в разрезе

На сегодняшний день на всех действующих установках, кроме израильского проекта, отказались от использования жидкого лития. Однако еще жидкую мишень для БНЗТ разрабатывали в Токийском технологическом институте (рисунок 3 (а)) [46]. Фотография струи жидкого лития в атмосфере аргона под давлением 10^{-4} Па представлена на рисунке 3 (б). Такая струя лития характеризуется скоростью потока 30 м/с, температурой лития 220 °С, толщиной литиевого потока 0,6 мм,

шириной 50 мм, длиной 50 мм. Однако такая литиевая мишень еще не испытана под пучком протонов.



(a)



(б)

Рисунок 3 – Фотографии стенда мишени с жидким литием в Токийском технологическом институте (а) и струи лития, текущей со скоростью 30 м/с (б)

1.2.2 Вращающаяся нейтроногенерирующая мишень с твердым литием

В Центральной больнице университета Хельсинки (Хельсинки, Финляндия) и в госпитале Shonan Kamakura General Hospital (Камакура, Япония) установлена нейтроногенерирующая мишень разработки компании Neutron Therapeutics [47]. Мишень является частью системы nuBeam, которая также включает электростатический ускоритель прямого действия с энергией 2,6 МэВ и током протонного пучка 30 мА. Схема облучения с помощью вращающейся мишени и система nuBeam изображена на рисунке 4.

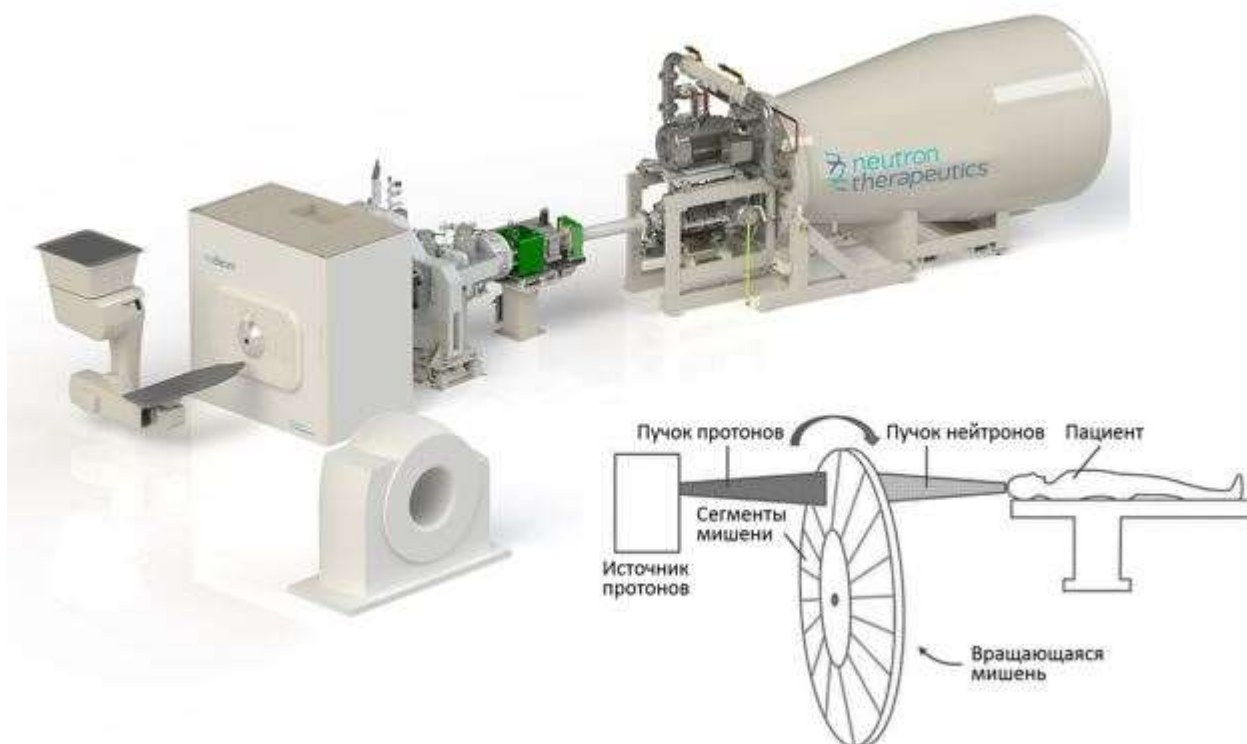


Рисунок 4 – Система nuBeam производства компании Neutron Therapeutics и схема облучения пациента при проведении БНЗТ с помощью вращающейся мишени

Вращающаяся мишень (рисунок 5) состоит из 16 сегментов, распределенных по окружности диаметром 84 см. Частота вращения мишени 10 Гц. Каждый сегмент состоит из медной подложки, на которую наносят слой лития толщиной около 400 мкм. Толщина литиевого слоя намеренно превышает длину пробега протона в литии, чтобы избежать торможения протонов в материале подложки, так как разработчики опасаются появления блистеров на меди при достижении флюенса $1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Медная подложка оснащена множеством каналов с поперечным сечением $1 \text{ мм} \times 0,75 \text{ мм}$ для водяного охлаждения с общим потоком 145 л/мин (9 л/мин на сегмент). По результатам моделирования при сбросе протонного пучка диаметром 120 мм и мощностью 78 кВт средняя температура литиевого слоя не превышает $51 \text{ }^\circ\text{C}$. Каждый сегмент вращающейся мишени может быть заменен после достижения определенного флюенса протонов. Замена сегментов осуществляется специальной роботизированной системой, чтобы предотвратить контакт обслуживающего персонала с радиацией. Хранение отработанных

сегментов осуществляется в свинцовых ящиках в инертной атмосфере аргона или в минеральном масле.

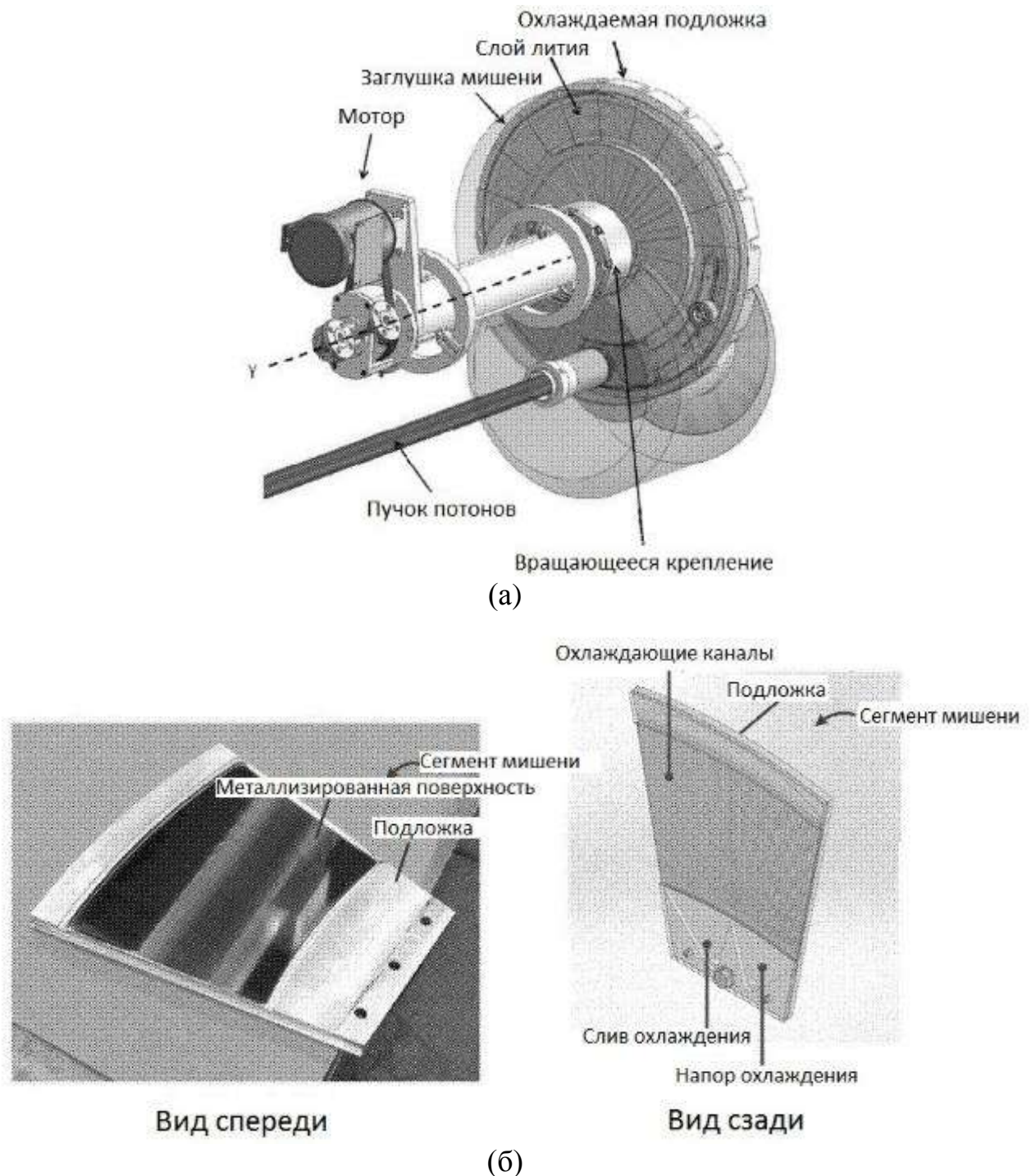


Рисунок 5 – Схема генерации нейтронов с помощью вращающейся мишени (а), сегмент вращающейся мишени (вид спереди и сзади) (б)

1.2.3 Стационарная нейтроногенерирующая мишень с твердым литием

В Университете Нагоя (Япония) источник нейтронов для БНЗТ состоит из протонного ускорителя типа динамитрон компании Ion Beam Application (Бельгия), генерирующего пучок протонов с энергией 2,8 МэВ и максимальным током 15 мА, запечатанной литиевой мишени (рисунок 6) и компактной системы формирования пучка (BSA). Нейтроногенерирующая мишень состоит из нескольких частей: медная подложка, литий (140 мкм), титановая фольга (5 мкм). Ранее между литием и медью специально размещали слой тантала толщиной 0,5 мм, который должен был предупредить появление блистеров на меди. Однако впоследствии от такой конструкции отказались [48]. В основании литиевой мишени находится массивная медная подложка со специальными каналами для охлаждения водой с V-образной системой ребер, расположенных в шахматном порядке [49]. Такое охлаждение реализовано специально для того, чтобы медная подложка обеспечивала эффективный теплоотвод при оценочной тепловой нагрузке $6,6 \text{ МВт/м}^2$ и литий не перегревался.

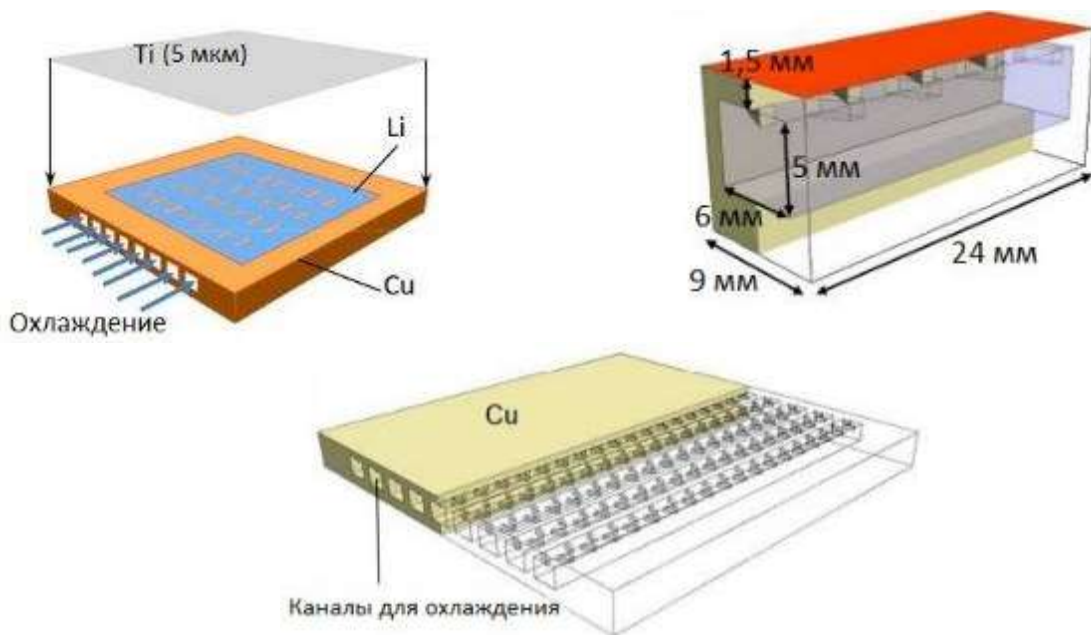
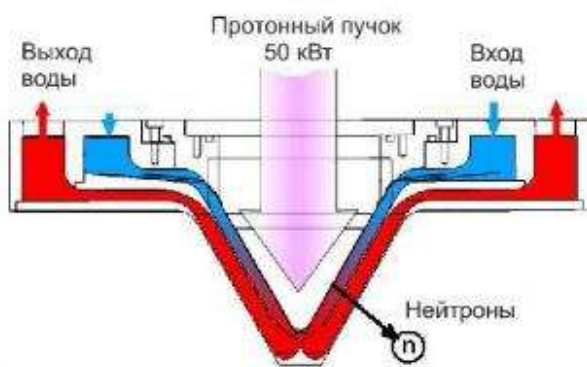
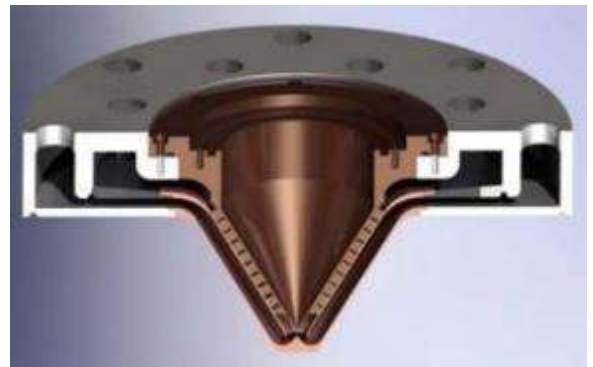


Рисунок 6 – Запечатанная литиевая мишень в Университете Нагоя (Япония)

В Национальном онкологическом центре Токио (Япония) (проект NCC CICS-1) используют конусную литиевую мишень (Linac Systems, США) [50] (рисунок 7). Пучок протонов мощностью 50 кВт попадает на слой металлического лития толщиной 50 мкм (а). Конический теплообменник мишени с двадцатью спиральными каналами диаметром 2 мм (в) выполнен из бескислородной меди и размещен внутри алюминиевого коллектора с внутренним покрытием из никеля для предотвращения коррозии (б). Для поддержания температуры поверхности мишени ниже 150 °С поток воды должен быть 80 кг·мин⁻¹ с падением давления 170 кПа. Между литием и медью гальваническим способом нанесен слой палладия толщиной 10 мкм для предупреждения образования блистеров (г).



(а)



(б)



(в)



(г)

Рисунок 7 – Конусная литиевая мишень Linac Systems: схема мишени (а), теплообменник и коллектор в сборке (б), внешняя сторона теплообменника с каналами охлаждения (в), внутренняя сторона теплообменника со слоем палладия (г)

Литиевая мишень, разработанная в Университете Бирмингема (Англия) [51], выполнена в виде слоя лития толщиной 800 мкм (больше длины торможения протона в литии), диаметром 40 мм, нанесенного на подложку из бескислородной меди (рисунок 8). Пучок протонов с энергией 2,8 МэВ для инициирования нейтроногенерирующей реакции получают с помощью динамитрона. Литиевая мишень имеет специальную струйную систему охлаждения, где в качестве теплопоглотителя используется тяжелая вода. Такая система охлаждения позволяет сбрасывать на мишень ток до 3 мА. На установке в течение длительного времени проводили исследования в области БНЗТ. Дальнейшие исследования в Университете Бирмингема планируют проводить на установке компании Neutron Therapeutics, описанной в разделе 1.2.2 [94].

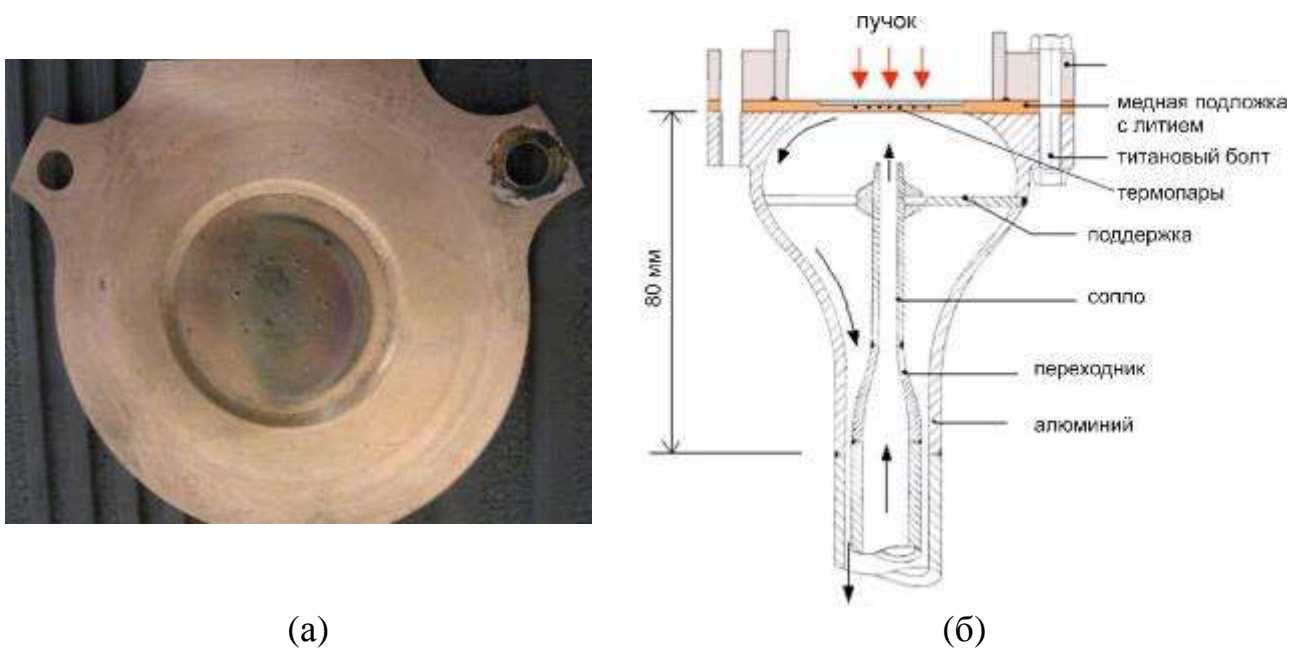


Рисунок 8 – Литиевая мишень в Бирмингеме: фотография (а), схема системы охлаждения (б)

В одной из работ [52] авторы сообщали об уменьшении выхода нейтронов (рисунок 9) на 10 % через 3 ч работы ускорителя в Бирмингеме при сбросе протонного пучка с током 1 мА и энергией 2,8 МэВ на литиевую мишень толщиной 1 мм и диаметром 40 мм. Авторы комментировали это следующим образом: “В

процессе работы наблюдалось изменение цвета мишени, поверхность покрывалась пятнами, слегка белыми и черными областями. Мы не имели возможности ближе осмотреть мишень из-за ее активации. Заметим, что вакуум был на уровне $8 \cdot 10^{-5}$ Па и что ускоритель оснащен безмасляными насосами. ... Являются ли эти пятна следствием изменения мишени или других факторов – так и не было выяснено”. Предполагалось, что деградация выхода нейтронов могла быть связана с влиянием остаточного газа [53]. С помощью масс-спектрометра вторичных ионов квадрупольного типа Riber MIQ-256 (CAMECA-RIBER, Франция) исследовали состав литиевого слоя после экспозиции в различных вакуумных условиях. Авторы статьи [53] делают акцент на наличии гидрида и нитрида лития. Известно, что выход нейтронов из нитрида лития в 1,6 раз меньше, чем из чистого лития. По результатам эксперимента установлено, что за 30 мин нахождения лития в вакууме $3 \cdot 10^{-3}$ Па в нитрид лития могло превратиться менее 10 % лития. Обнаруженное количество азота не объясняет деградацию выхода нейтронов в Бирмингемском эксперименте.

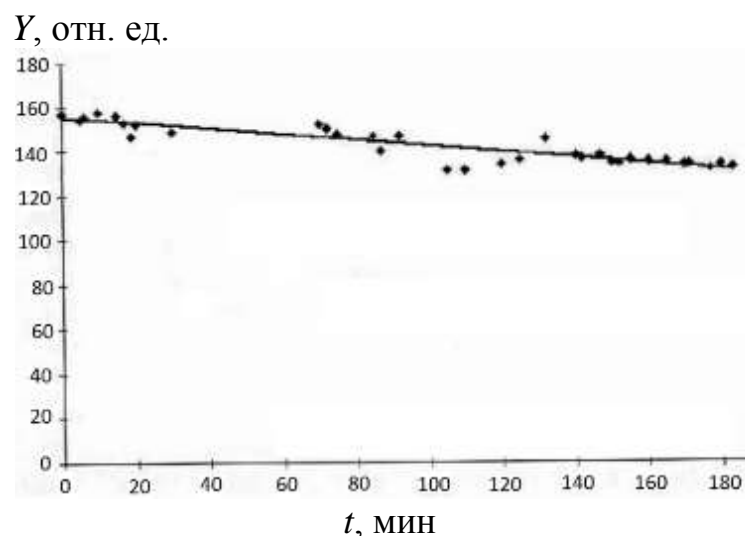


Рисунок 9 – Зависимость выхода нейтронов на единицу тока протонов Y от времени t

1.3 Нейтроногенерирующая мишень ускорительного источника эпитепловых нейтронов ИЯФ СО РАН

В Институте ядерной физики СО РАН предложен и создан ускорительный источник эпитепловых нейтронов [54–56]. Источник нейтронов специально создавали для развития бор-нейтронозахватной терапии, что определило его конструкцию и заложенные параметры. Для генерации нейтронов выбрана реакция ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, которая обеспечивает максимальный выход нейтронов при их минимальной энергии. Наилучший спектр нейтронов (энергия 1–30 кэВ, плотность потока $10^9 \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$) при малом выходе нежелательных γ -квантов достигают на тонкой литиевой мишени (толщина лития не превышает длину торможения протона в литии) при энергии протонов 2,3–2,5 МэВ с использованием системы формирования пучка. Сейчас на ускорителе с использованием ионного источника [57] в рутинном режиме получают ток протонного пучка 3 мА (при максимальном 10 мА) с энергией до 2,3 МэВ.

Для генерации нейтронов до 2018 г. использовали стационарную литиевую мишень [24], выполненную в виде эффективно охлаждаемой медной подложки с тонким слоем кристаллически плотного лития, нанесенного методом термического напыления в вакууме (рисунок 10). Напыление лития осуществляли прямо на установке, используя разработанную систему напыления лития, описанную в [43]. При изготовлении системы использован промышленно производимый шиббер. На тарелку шиббера сверху помещен нагреватель, а под тарелкой установлен испаритель с круговой щелью, в который закладывают литий. Для напыления тарелку шиббера выдвигают в протонопровод и сдвигают в направлении к мишени, используя механизм уплотнения шиббера. В результате такого сдвига тарелка упирается в сильфон, что ограничивает объем напыления. Затем включают нагреватель, и пары лития распространяются через круговую щель. Поскольку сильфон теплоизолирован и в процессе напыления нагревается, то напыления на

сильфон не происходит. Напыление осуществляется только на подложку мишени, которая охлаждается водой.



(a)



(б)

Рисунок 10 – Нейтроногенерирующая мишень ускорительного источника ИЯФ СО РАН (а): 1 – система для напыления лития, 2 – нейтроногенерирующая мишень с охлаждением, 3 – листы из оргстекла для замедления нейтронов. Стрелкой указано направление пучка протонов. Медная подложка с каналами для охлаждения, на которую с обратной стороны напыляют литий (б)

С 2018 г. концепция мишенного узла претерпела изменения. Актуальный мишенный узел (рисунок 11) выполнен в виде алюминиевой трубы с минимальным внутренним диаметром 100 мм. Выбор алюминия в качестве материала для изготовления мишенного узла обоснован в диссертации [25, 26]. С помощью шибера 1 со стандартным соединением CF100 узел стыкуют к установке или к разработанному стенду напыления лития. Мишенный узел с характерной длиной 443 мм без патрубков (рисунок 11 (а)) используют для размещения в системе формирования пучка с замедлителем из фторида магния [96]. Мишенный узел с характерной длиной 131 мм (рисунок 11 (б)) используют для проведения научных

исследований; этот узел оснащен тремя патрубками 2 для диагностического оборудования или наблюдательных окон, расположенных под углом $52,5^\circ$ к оси. На торец мишенного узла уплотняют медный диск диаметром 144 мм толщиной 8 мм (рисунок 10 (б)). Со стороны протонного пучка на медный диск термическим способом напыляют тонкий слой лития кристаллической плотности диаметром 84 мм. С обратной стороны медного диска внутри диаметра 122 мм сделаны четыре двухзаходных спиралевидных канала глубиной 3 мм, шириной 6 мм, с перегородкой между каналами толщиной 1 мм для охлаждения водой [58]. К обратной стороне медного диска прижимают плоский алюминиевый диск с отверстием в центре для подачи охлаждающей воды и двумя отверстиями по периферии для отвода воды 3. При характерном расходе воды 15–17 л/мин в каналах охлаждения реализуется турбулентное течение воды со скоростью 3,5–4 м/с, обеспечивающее эффективный теплообмен [24].

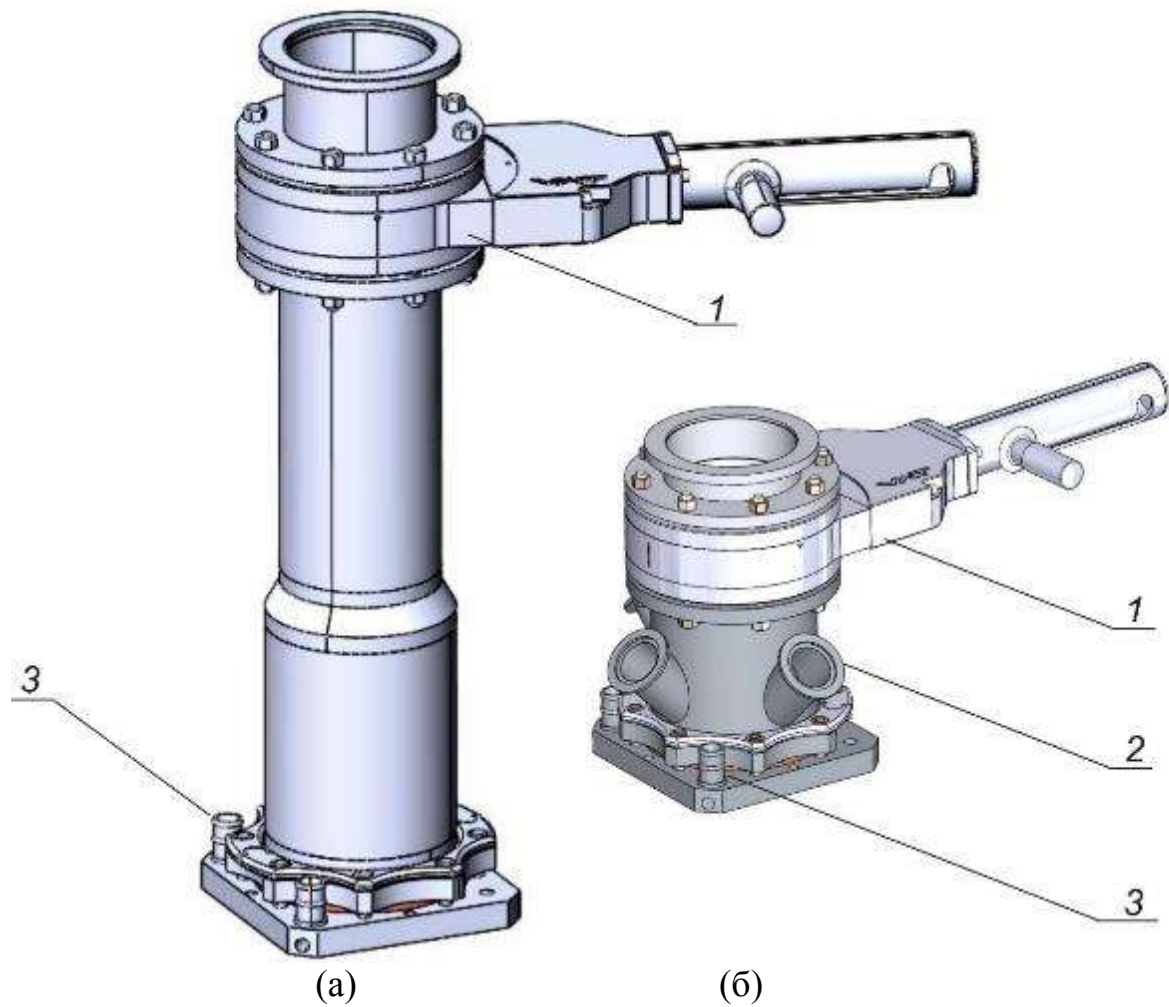


Рисунок 11 – Мишенные узлы: для размещения внутри системы формирования пучка нейтронов с замедлителем из фторида магния (а), для проведения научных исследований с возможностью наблюдения за мишенью (б): 1 – шиббер, 2 – патрубки, 3 – подача охлаждения

Напыление лития на мишень осуществляют на отдельном разработанном стенде напыления лития (рисунок 12) [37]. Стенд напыления лития – это вакуумная камера со средствами вакуумной откачки, в которой на ввод движения с шаговым двигателем установлен титановый стакан с плоским керамическим нагревателем инфракрасного излучения QFE.

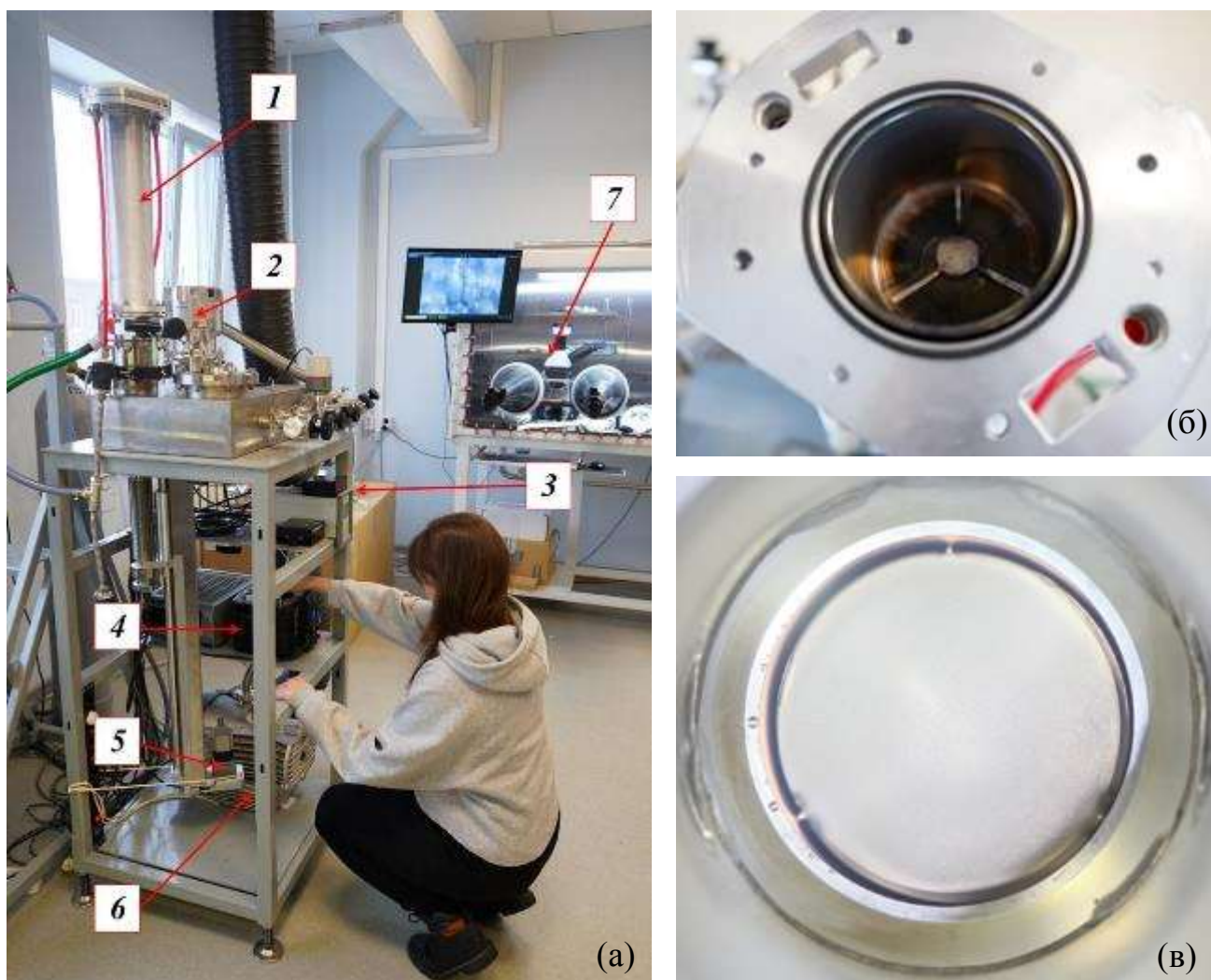


Рисунок 12 – Напыление лития: (а) – 1 – мишенный узел, 2 – турбомолекулярный насос, 3 – датчик температуры, 4 – ЛАТР, 5 – шаговый двигатель, 6 – форвакуумный насос, 7 – перчаточный бокс с микроскопом; (б) – вид сверху на нагреватель, в который закладывают литий, закрытый защитным экраном; (в) – фотография мишени с напыленным литием

Литий, используемый для напыления, хранят в перчаточном боксе MBraun MB-200MOD (MBraun, Германия), заполненном аргоном особой чистоты 99,9999 %. Перед напылением необходимое количество лития с точностью 0,1 мг взвешивают на лабораторных микровесах OHAUS (США) внутри перчаточного бокса. После взвешивания литий пакуют в герметичную пробирку, извлекают из перчаточного бокса и вскрывают пробирку непосредственно перед укладкой лития на дно титанового стакана в стенде напыления лития. Литий на дне титанового стакана закрывают специальным экраном с щелями для равномерного напыления

(см. главу 4, параграф 4.5) и устанавливают мишенный узел на стенд. Затем стенд напыления лития вместе с мишенным узлом откачивают до давления 10^{-4} Па, включают нагреватель и осуществляют термическое напыление лития на поверхность мишени, охлаждаемую сжатым воздухом. Напыление лития обычно происходит в течение 2 ч при температуре нагревателя около $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. По прошествии двух часов нагреватель выключают и выводят титановый стакан из мишенного узла с помощью шагового двигателя, после чего закрывают шибер на мишенном узле. Узел с напыленным литием и с сохранением вакуума отсоединяют от стенда напыления, переносят на установку и подсоединяют к ней.

Разработанный стенд напыления лития и процедура напыления представлены и обсуждены на 10-й Международной школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Хельсинки, Финляндия, 2019) [37].

Глава 2.

Радиационный блистеринг меди с тонким слоем лития

Для исследования радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени используют нейтроногенерирующую мишень ускорительного источника эпитепловых нейтронов ИЯФ СО РАН, описанную в главе 1. Остановимся еще раз на ключевых параметрах этой мишени, важных для проведения исследования. Мишень выполнена в виде тонкого литиевого слоя (порядка 60 мкм), напыленного на эффективно охлаждаемую подложку, в данном случае медную [24, 58]. Диаметр напыления 82 мм. Генерацию нейтронов осуществляют в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ путем направления пучка протонов с энергией до 2,3 МэВ и током до 10 мА, получаемого в ускорителе-тандале с вакуумной изоляцией, на литиевую мишень. В соответствии с требованиями, указанными в главе 1 и в диссертации [43], толщину литиевого слоя, генерирующего нейтроны, выбирают таким образом, чтобы энергия протонов на выходе из слоя была немного ниже 1,882 МэВ, порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Дальнейшее торможение протонов и их поглощение происходят в конструкционном материале, к которому предъявляют следующие требования. Во-первых, этот материал должен обладать высоким коэффициентом теплопроводности и быть достаточно тонким, чтобы температура лития не превысила температуру плавления 182 °С для предотвращения распространения образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7 вместе с парами лития. С этой точки зрения наилучший материал – медь. Во-вторых, торможение протонов в этом материале не должно приводить к заметной мощности нежелательного рентгеновского и γ -излучения. Как выяснено в результате проведенных исследований [59], наилучшими материалами являются молибден и тантал, но возможно и использование меди. И, в-третьих, считается, что этот материал должен обладать достаточной стойкостью к радиационному блистерингу. Оговоримся, что

под термином “блистеринг (blistering)” в соответствии с работами [12-14] будем понимать деформацию поверхностного слоя облучаемого металла, вызванную накоплением атомов газа на глубине торможения ионов, имплантированных во время облучения. На поверхности металла блистеринг проявляется в виде куполообразных возвышений (пузырей) и отшелушивания тонкого поверхностного слоя (чешуек).

При создании нейтроногенерирующей мишени для БНЗТ особое внимание уделяют проблеме блистеринга по нескольким причинам: блистеринг может делать мишень непригодной к эксплуатации [15, 16], или может ограничивать время эксплуатации [17-21], или может создать проблемы при клиническом применении [22, 23, 60]. Для решения проблемы блистеринга, важность которой подчеркивается во всех работах, предлагают различные решения. Это использование мишени с толщиной меньше длины пробега протонов, как в проекте C-BENS с 30 МэВ протонами и бериллиевой мишенью [61]. В Бирмингеме [52], в Обнинске [62] и в Хельсинки, наоборот, делают литий толстым, чтобы в нем останавливались протоны. В большинстве же проектов между нейтроногенерирующим слоем и теплоотводящей медной подложкой размещают тонкий слой металла, наиболее стойкого к радиационному блистерингу, как правило, палладия или тантала [50, 63, 64]. Такое разнообразие решений, возможно, связано с отсутствием знаний о влиянии блистеринга на выход нейтронов, в том числе и с отсутствием данных о пороге образования блистеров в металлах при имплантации протонов с энергией около 2 МэВ и при температуре металлов в районе 150 °С – ниже температуры плавления лития. Данные о пороге образования блистеров при таких параметрах актуальны не только для литиевой мишени, но и для бериллиевой, поскольку обе рассматриваемые для БНЗТ реакции генерации нейтронов, ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$, характеризуются близкими значениями порога генерации нейтронов: 1,882 и 2,057 МэВ соответственно.

Порог образования блистеров для меди и тантала при имплантации протонов с энергией 2 МэВ измерен на установке и результат опубликован [28]. При проведении этих исследований обращено внимание на то, что после появления блистеров на поверхности меди дальнейшее облучение до флюенса, в 4 раза большего, не приводило к модификации поверхности. Сделано предположение о том, что при формировании блистеров в них образуются отверстия или трещины, и водород, доставляемый пучком протонов в полость блистера, выходит через отверстия или трещины и не модифицирует поверхность. Если накапливаемый водород будет уходить через отверстия и трещины, а уменьшение теплопроводности из-за блистеров не будет критическим для расплавления лития, то тонкую литиевую мишень можно будет использовать для генерации нейтронов после появления блистеров.

Эти предположения послужили основанием для исследования влияния радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени, результаты которого представлены в данной главе.

2.1 Особенности исследования и экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки приведена на рисунке 13. После напыления лития на стенде напыления мишенный узел с исследуемым образцом – литиевой нейтроногенерирующей мишенью 7 – переносят на установку, где мишенный узел подсоединяют к горизонтальному тракту транспортировки пучка протонов, и после откачки воздуха из тракта открывают шибер 5.

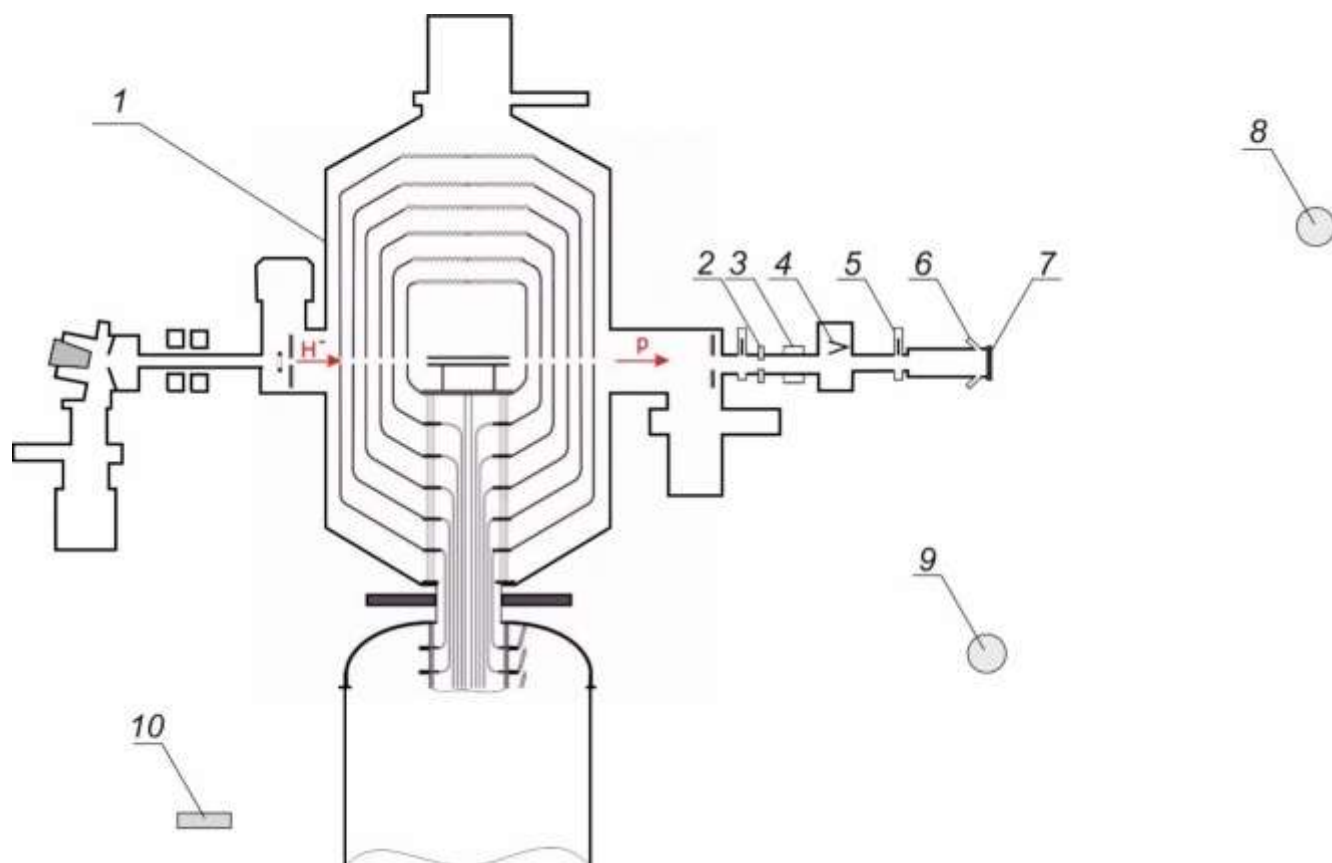


Рисунок 13 – Схема экспериментальной установки: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – охлаждаемая диафрагма апертурой 26 мм, 3 – бесконтактный датчик тока, 4 – выдвижной цилиндр Фарадея, 5 – шибер, 6 – патрубки с окнами для наблюдения, 7 – исследуемый образец, 8 – дозиметр № 1, 9 – дозиметр № 2, 10 – детектор нейтронов

Образец облучают пучком протонов диаметром 10 мм с током 500 мкА. Величину тока намеренно ограничивают для поддержания литиевого слоя в твердом состоянии, чтобы минимизировать распространение по установке образующегося радиоактивного изотопа бериллий-7. Перед облучением образца в тракт транспортировки пучка протонов вдвигают цилиндр Фарадея 4, оснащенный девятью термосопротивлениями для контроля положения пучка. После того, как получают протонный пучок с током 500 мкА и выставляют пучок по центру, цилиндр Фарадея выдвигают обратно, и пучок протонов облучает образец. Ток пучка протонов измеряют и контролируют бесконтактным датчиком тока NPCT-CF4[™]-1/2-47.7-120-UHV (Bergoz Instrumentation, Франция) 3. Через один из патрубков 6 со стеклом из плавленого кварца осуществляют *in situ* наблюдение за

поверхностью образца длиннофокусным микроскопом КХ InfiniMax™ (DistaMax™, Infinity Photo-optical Co. США) с CMOS камерой Basler Ace acA4112-30uc. Через этот же патрубок образец подсвечивают галогенной лампой источника света LFP-10WP-R (Shibuya, Япония) мощностью 10 Вт. Через второй патрубок со стеклом из фторида бария сначала контролируют положение пучка протонов на исследуемом образце тепловизором FLIR T650sc (FLIR Systems Inc., США), а затем осуществляют наблюдение за поверхностью образца видеокамерой Hikvision DS-2CD4026FWD-AP с объективом Hikvision HV1140D-8MPIR.

Измерение мощности дозы нейтронного излучения осуществляют двумя блоками детектирования БДМН-100-07 (ООО "Доза", Россия). Каждый такой блок состоит из шарового замедлителя с размещенным в нем узлом детектирования УДМН-100. Передача данных осуществляется блоком обработки и передачи данных БОП-1М. Один из блоков детектирования, дозиметр № 1 (8 на рисунке 13), размещен на стене радиационно-защищенного помещения на расстоянии 5,4 м от образца под углом 22° к направлению пучка протонов. Второй блок, дозиметр № 2 (9 на рисунке 13), размещен на расстоянии 1,5 м от центра образца под углом 90° к направлению пучка протонов.

Измерение потока нейтронов осуществляют детектором нейтронов с литийсодержащим сцинтиллятором GS20 (The Saint-Gobain Crystals, США), смонтированным на фотоэлектронном умножителе Hamamatsu R6095 с высоковольтным источником питания MHV12-1.5K1300P (TRACO Electronics, Япония) (10 на рисунке 13). Детектор размещен на расстоянии 5,46 м от образца под углом 132° к направлению пучка протонов.

После облучения образцы исследуют на спектрометре комбинационного рассеяния LabRAM HR Evolution (HORIBA Scientific, Япония), на монокристалльном дифрактометре Карра APEX DUO (Bruker, Германия), на электронном микроскопе DM 5000 (Leica, Германия), на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами разработки

Института автоматики и электрометрии СО РАН (Новосибирск, Россия), на растровом электронном микроскопе EVO 50 XVP (Zeiss, Германия), на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой параллельного действия с аксиальным и радиальным обзором плазмы ICPE-9820 (Shimadzu, Япония).

Реакция ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ пороговая, что означает, что генерация нейтронов происходит при энергии протонов больше пороговой энергии, в данном случае 1,882 МэВ. В соответствии с результатами расчетов, приведенными в статье [66], выход нейтронов растет линейно при увеличении энергии протонов с 1,910 до 2,000 МэВ: достоверность линейной аппроксимации значений, рассчитанных с шагом 0,01 МэВ, $R^2 = 1$. В этом диапазоне энергии протонов E_p выход нейтронов может быть представлен выражением $Y = 9,5345 \cdot 10^{10} (E_p - 1,885) \text{ мКл}^{-1}$, где E_p подставляется в мегаэлектронвольтах. Заметим, что эта прямая линейной аппроксимации данных пересекает ось абсцисс не при значении порога реакции в 1,882 МэВ, а при несколько большем значении – 1,885 МэВ.

Линейность выхода нейтронов от энергии протонов применена для калибровки омического делителя напряжения, предназначенного для измерения потенциала, подаваемого на высоковольтный электрод ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией. Измерение потенциала осуществляется с частотой 1 Гц и используется в программе управления установкой для поддержания потенциала высоковольтного электрода ускорителя на заданном уровне. Ранее при эксплуатации ускорителя было замечено, что потенциал высоковольтного источника питания и, как следствие, энергия протонов плавно уменьшаются в течение рабочего дня. Возможно это связано с непропорциональным изменением сопротивлений плеч омического делителя при его нагреве. Как было установлено при проведении данных исследований, в течение 5 ч непрерывной работы ускорителя при токе 500 мкА энергия протонов уменьшается на 0,65 %. Такое относительно небольшое уменьшение энергии протонов из-за порогового характера реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ ведет к уменьшению выхода нейтронов на

значительно бóльшую величину – 11 %. Для того, чтобы определить выход нейтронов с лучшей точностью, чем 11 %, проводилась калибровка омического делителя.

Калибровку омического делителя осуществляют следующим образом. В программе управления установкой выставляют напряжение высоковольтного источника питания $U_1 = 0,95$ МВ. При энергии инжектируемых в ускоритель отрицательных ионов водорода 20 кэВ это должно обеспечить получение протонного пучка с энергией 1,92 МэВ. В течение нескольких минут дозиметром № 1 измеряют мощность дозы нейтронного излучения D_1 . Затем напряжение высоковольтного источника питания поднимают до $U_2 = 1,01$ МВ, доводя энергию протонов до 2,04 МэВ, и повторяют измерения дозы D_2 . На графике зависимости дозы от напряжения через точки (U_1, D_1) и (U_2, D_2) проводят прямую линию до пересечения с осью абсцисс и определяют координату пересечения U_0 . Если $U_0 \neq U_{\text{thr}} = 0,9325$ МВ, это означает, что напряжение высоковольтного источника питания отличается от выставленного значения. Отличие напряжения от выставленного не превышает 0,65 % и учитывается в измеряемом выходе нейтронов дополнительным членом $U_{\text{thr}}/U_0 \approx 1$. Выход нейтронов с учетом поправки на калибровку делителя считаем как $(D_2 - D_1) \cdot U_{\text{thr}}/U_0$. Выход нейтронов прямо пропорционален углу наклона прямой зависимости дозы нейтронного излучения от напряжения: он тем больше, чем больше угол.

2.2 Результаты измерений и их обсуждение

2.2.1 Экспериментальные результаты. Серия I

В первой серии экспериментов на медный образец напылен слой лития толщиной больше толщины, на которой генерируют нейтроны в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, но меньше пути, пройденного протоном в литии до его остановки.

При выборе толщины слоя лития используют выражение скорости потери энергии протона S в литии в зависимости от его энергии E , приведенное в работе [67]:

$$S = \frac{S_{\text{low}} \cdot S_{\text{high}}}{S_{\text{low}} + S_{\text{high}}} \text{ эВ}/(10^{15} \text{ атомов}/\text{см}^2), \quad (1)$$

где $S_{\text{low}} = 1,6 E^{0,45}$, $S_{\text{high}} = \frac{725,6}{E} \ln(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578 E)$, E берется в килоэлектронвольтах. Используя эту формулу, получим, что длина пробега протона в литии составляет 169 мкм для протона с энергией 2,04 МэВ и 147 мкм для 1,882 МэВ. Следовательно, при начальной энергии протонов 2,04 МэВ генерация нейтронов осуществляется до глубины 22 мкм от поверхности лития.

Исследуемый образец изготовлен из 99,996 % мелкозернистой меди (OFC-1 N3150 C1011, SH Coper Products Co., Ltd., Япония). На образец напылен литий толщиной 84 мкм, его использовано 237 мг. Образец облучали пучком протонов с током 500 ± 10 мкА в течение 11 дней по 4 ч в день. Полный набранный интеграл тока протонов на образце составил 21,08 мА·ч.

Облучение образца пучком протонов осуществляют при энергии протонов 1,8 МэВ, ниже порога генерации нейтронов, и кратковременно при бóльшей энергии, 1,92 и 2,04 МэВ, для определения выхода нейтронов.

Обратим внимание на то, что при проведении данных исследований получают пучок протонов с параметрами, подобными тем, что получали при *in situ* наблюдении блистеринга на меди при имплантации 2 МэВ протонов [28]. В частности, в работе [28] по распространению границы области с блистерами

определили эффективную площадь пучка как отношение силы тока к его максимальной плотности; она составила величину $75 \pm 7 \text{ мм}^2$. Принимая площадь пучка равной 75 мм^2 , получим, что при набранном интеграле тока $21,08 \text{ мА}\cdot\text{ч}$ в центре пучка флюенс протонов составил $(6,3 \pm 0,6) 10^{20} \text{ см}^{-2}$.

В работе [28] указано, что на поверхности меди чистотой 99,996 % блистеры появляются при интеграле тока $0,15 \text{ мА}\cdot\text{ч}$ при имплантации 2 МэВ протонов. В данном случае протоны теряют часть энергии на литии и входят в медь с энергией 1 МэВ , останавливаясь в ней на глубине 7 мкм [67]. Поскольку считается, что порог образования блистеров зависит от энергии как $E^{0,4}$ [13], то при имплантации меди 1 МэВ протонами блистеры должны были появиться с несколько меньшего интеграла тока – $0,11 \text{ мА}\cdot\text{ч}$.

Выход нейтронов, измеренный дозиметром № 1, в зависимости от набранного интеграла тока протонов представлен на рисунке 14, выход нейтронов, измеренный детектором нейтронов, – на рисунке 15.

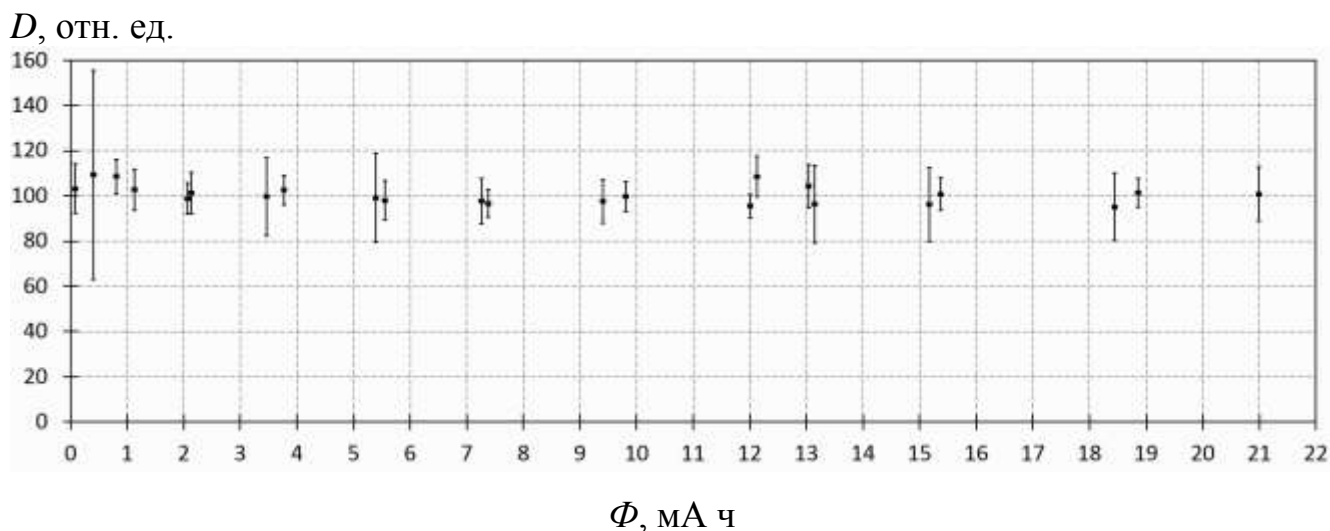


Рисунок 14 – Зависимость выхода нейтронов D , измеренного дозиметром № 1, от набранного интеграла тока протонов Φ

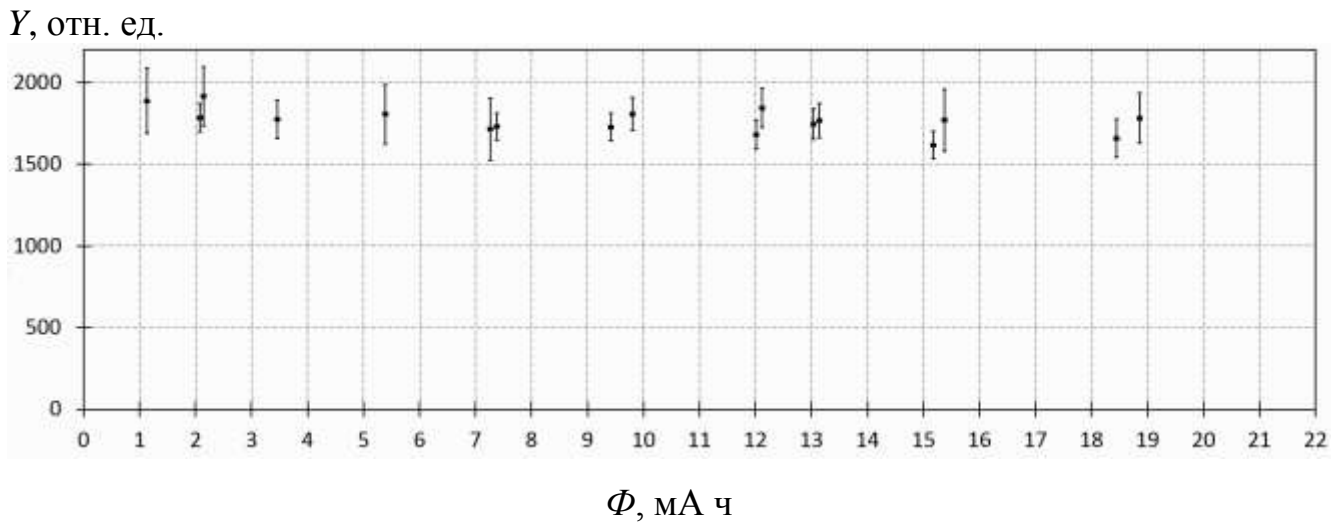


Рисунок 15 – Зависимость выхода нейтронов Y , измеренного детектором нейтронов, от набранного интеграла тока протонов Φ

Ожидалось [12-23], что после появления блистеров выход нейтронов может значительно уменьшиться. Но из рисунка 14 и рисунка 15 видно, что ожидаемой деградации выхода нейтронов нет. С точностью 7 % можно утверждать, что облучение мишени до флюенса, почти в 200 раз большего флюенса появления блистеров, не привело к деградации выхода нейтронов. Зависимости, представленные на рисунке 14 и рисунке 15, позволяют сформулировать результат, который изначально был целью данного исследования: появление блистеров на поверхности медной подложки нейтроногенерирующей мишени с литиевым слоем не ведет к деградации выхода нейтронов. Применительно к проблеме бор-нейтронозахватной терапии этот результат кардинально меняет парадигму: блистеринг не ограничивает время эксплуатации мишени. Во всяком случае, это утверждение относится к мишени, выполненной в виде тонкого слоя лития, нанесенного на медную теплоотводящую подложку. Появление блистеров на поверхности меди не приводит к деградации выхода нейтронов, и мишень можно продолжать использовать для терапии до 340 пациентов, как можно прогнозировать из достигнутой в данном эксперименте плотности флюенса протонов при планируемом токе протонов 10 мА, диаметре мишени 10 см и времени терапии 40 мин [68].

Несмотря на то, что основной результат исследования получен, проведены дальнейшие исследования, чтобы выяснить детали процессов, приводящих к такому результату.

В течение всего времени облучения осуществляют мониторинг поверхности исследуемого образца длиннофокусным микроскопом KX InfiniMax™ с CMOS камерой Basler Ace acA4112-30uc и видеокамерой Hikvision и производят запись видеосигналов. Появление и исчезновение блистеров отчетливо наблюдают в разных местах поверхности мишени. Так, на рисунке 16 представлены две области изображения длиннофокусного микроскопа шестого дня облучения. Видно, что в центре пучка протонов поверхность лития однородная и блистеров нет, а на периферии пучка блистеры видны отчетливо. Количественно модификацию поверхности лития блистерами определяют как площадь повышенной яркости в выбранной части изображения. Программным образом подвергают обработке каждый 720-й кадр файла видеосигнала, т.е. обрабатывают изображения, следующие с шагом 30 с. Для этого выделяют области повышенной яркости, соответствующие блистерам, и определяют площадь этих областей в двух зонах изображения, в центре пучка и на периферии. На рисунке 17 приведены примеры изображений с разным количеством блистеров, которые специально выделены красным, и указаны соответствующие значения площади повышенной яркости. Результат обработки видеосигнала микроскопа представлен на рисунке 18. Здесь по оси ординат отложено значение площади повышенной яркости выбранной части изображения (в центре пучка и на периферии), по оси абсцисс – последовательность обработанных кадров изображения, сгруппированных по дням облучения: сначала 1 февраля 2019 г., потом 4 февраля и так до 15 февраля. Для наглядности на графике проставлены вертикальные линии, отделяющие один день облучения от другого. Обратим внимание на то, что, хотя облучение в течение 11 дней проводили по 4 ч, количество обработанных кадров в день различается. Это связано с тем, что в первый день облучения настраивали микроскоп, и с тем, что зачастую, особенно ближе к концу эксперимента, на данное окно наблюдения

устанавливали тепловизор или пирометр и не записывали изображение с микроскопа. Видно, что в центральной области пучка блистеры на поверхности лития появились достаточно быстро, а затем их количество стало уменьшаться уже в первый же день облучения. На следующий день их количество сначала росло, а потом падало. И так повторялось каждый раз, но с постоянным уменьшением количества блистеров вплоть до их отсутствия в последние два дня облучения.

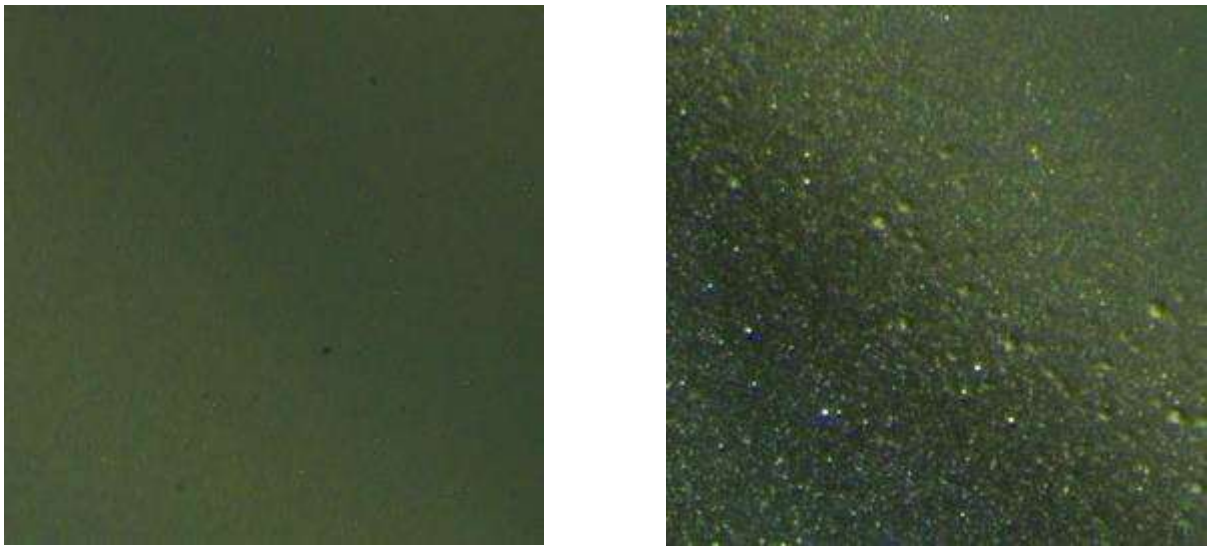


Рисунок 16 – Изображение мишени, снятое длиннофокусным микроскопом на 6-й день облучения: слева – в центре пучка протонов, справа – на периферии. Размер изображений 50 мм по горизонтали и 60 мм по вертикали

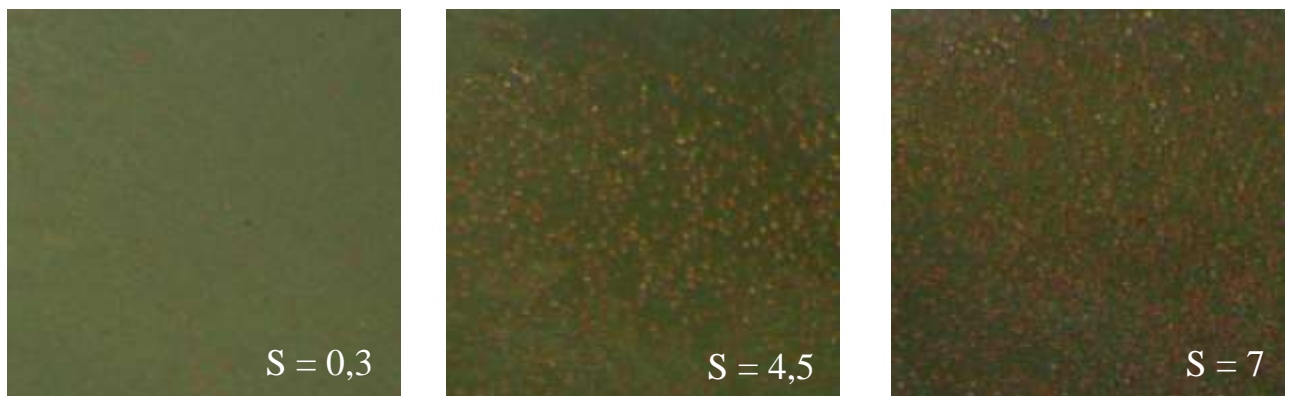
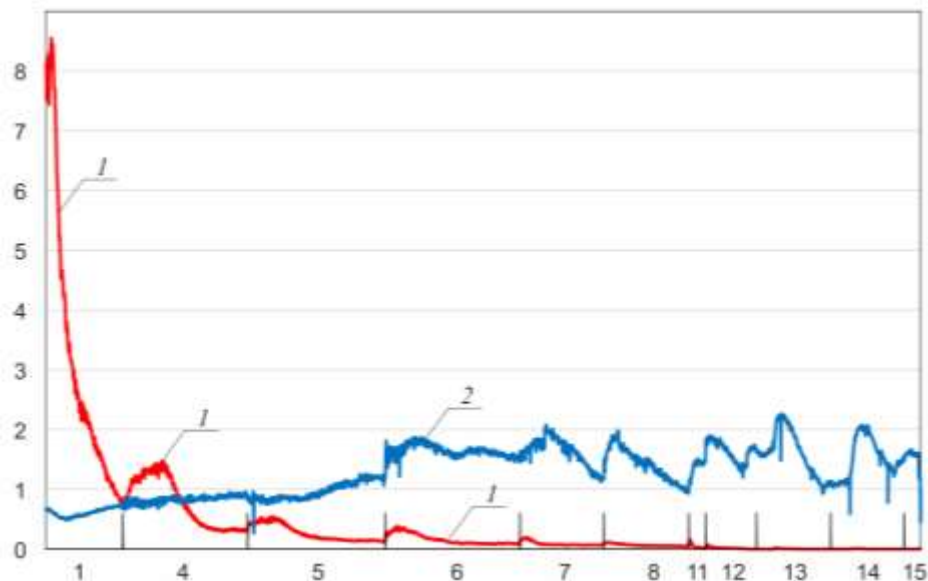


Рисунок 17 – Примеры обработки изображений с разным значением площади повышенной яркости $S = 0,3; 4,5; 7$

S , отн. ед.



Дни облучения в феврале 2019 г.

Рисунок 18 – Зависимость площади повышенной яркости выбранной части изображения (1 – в центре пучка протонов, 2 – на периферии) от последовательности обработанных кадров изображения, сгруппированных по дням облучения

На периферии наблюдался плавный рост количества блистеров в течение первых трех дней облучения, а затем – подобные периодические колебания, когда их количество в течение дня сначала росло, а потом уменьшалось, возвращаясь на прежний уровень.

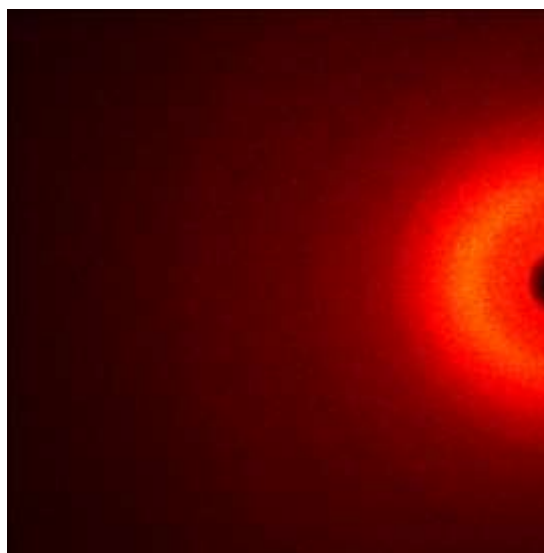
После окончания облучения исследуемый образец был снят и помещен в атмосферную среду. Большая часть поверхности лития практически сразу же почернела – эта область не облучалась пучком протонов. Центральная часть образца, облученная пучком, смотрелась серой (серебристой) с некоторым количеством пятен более темного цвета, в одном месте коричневого.

Из разных зон лития (рисунок 19 (а)) с помощью стальной иглы изъяты частицы размером 0,3-0,5 мм и исследованы на монокристалльном дифрактометре Карра APEX DUO (Bruker, Германия) в геометрии Дебая–Шеррера по методике, изложенной в работе [69]. Полученные дифрактограммы приведены на

рисунке 19 (б – з). При рентгенофазовом анализе полученных дифрактограмм были обнаружены фазы LiOH , $\text{Li}_2(\text{CO}_3)$, Li_3N в области, не облученной пучком протонов, в то время как в области, облученной пучком, в ряде изъятых частиц обнаружены эти фазы, а ряд частиц были аморфны. Например, на дифрактограмме из зоны № 1 нет характерных концентрических кругов, которые являются максимумами дифракции на кристаллической решетке (рисунок 19 (б)). Это свидетельствует о том, что в изъятном образце отсутствует кристаллическая решетка, и он является аморфным. Подобный результат получен при исследовании поверхности лития на спектрометре комбинационного рассеяния LabRAM HR Evolution (HORIBA Scientific).

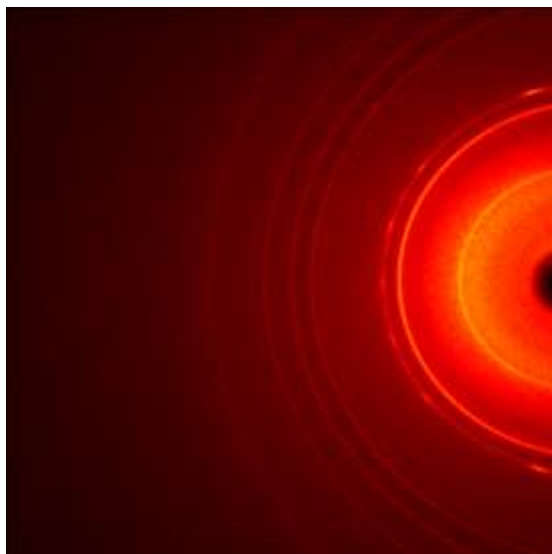


(а)

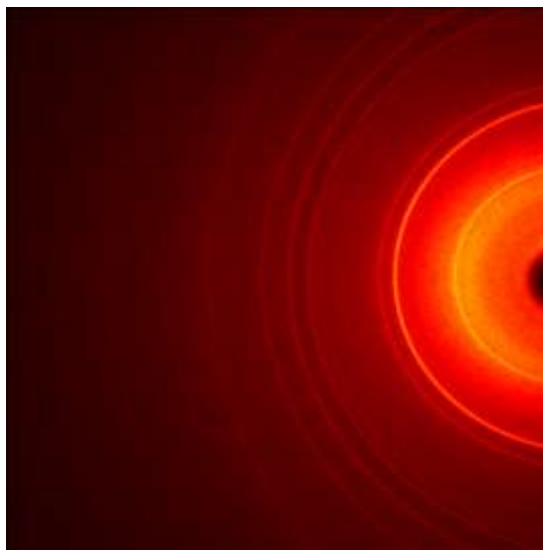


(б) Зона № 1. Аморфный

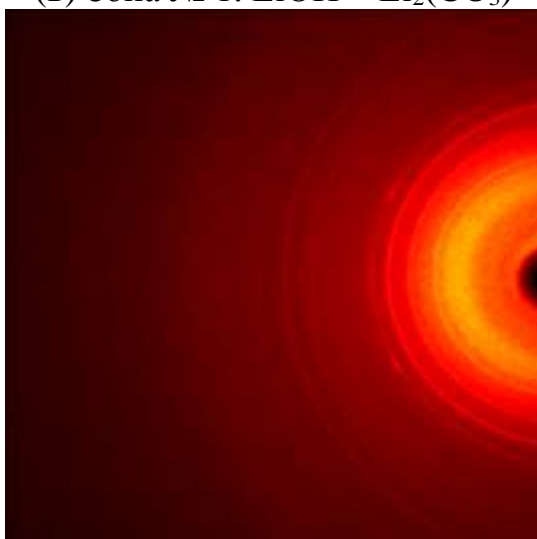
Рисунок 19 – Медная подложка с литием после облучения с указанием зон, из которых были изъятые образцы для исследования на дифрактометре (а), дифрактограммы образцов, изъятых с разных зон лития 1 – 4 с указанием обнаруженных фаз (б – з)



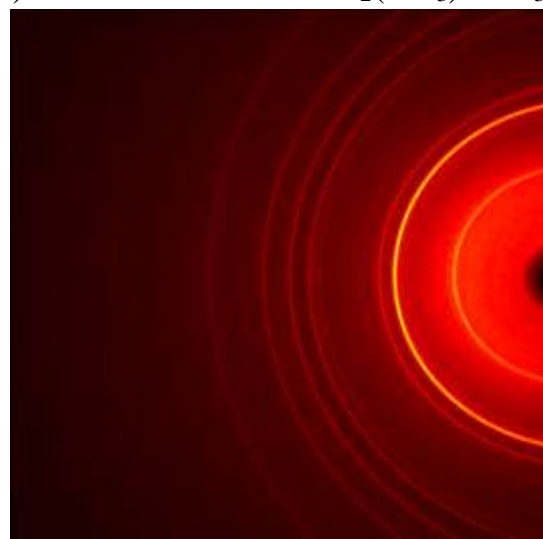
(в) Зона № 1. $\text{LiOH} + \text{Li}_2(\text{CO}_3)$



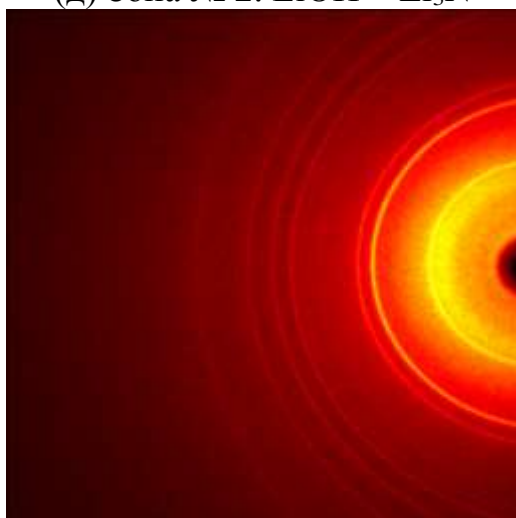
(г) Зона № 2. $\text{LiOH} + \text{Li}_2(\text{CO}_3) + \text{Li}_3\text{N}$



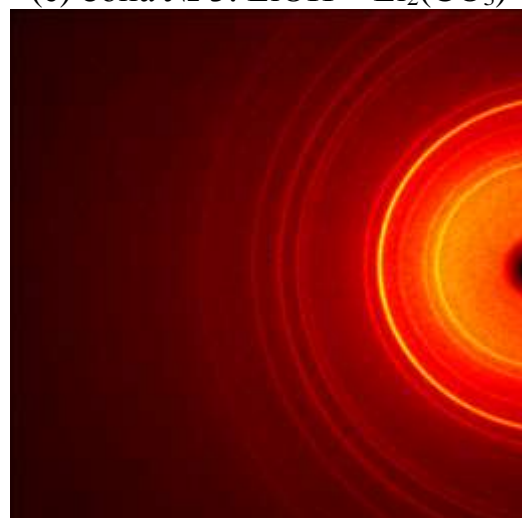
(д) Зона № 2. $\text{LiOH} + \text{Li}_3\text{N}$



(е) Зона № 3. $\text{LiOH} + \text{Li}_2(\text{CO}_3)$



(ж) Зона № 3. LiOH



(з) Зона № 4. $\text{LiOH} + \text{Li}_2(\text{CO}_3) + \text{Li}_3\text{N}$

Продолжение Рисунка 19

Возможно, это связано с радиационными повреждениями исследуемого образца, которые явились следствием длительного облучения протонным пучком. С помощью программы SRIM получена численная зависимость величины повреждений, выраженной в dpa – displacements per atom, от глубины образца, представленная на Рисунке 20. Для моделирования в программе SRIM использовали функцию “Detailed Calculation with full Damage Cascades”, задали толщину лития 100 мкм, энергию протонов 2 МэВ, флюенс протонов соответствует набранному в эксперименте, а именно $6,3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$. На рисунке 20 видно, что повреждения начинаются на границе меди и лития, на оси абсцисс медь начинается со 100 мкм, при этом максимальное значение dpa в литии 0,2, а наибольшие повреждения, порядка 900 dpa, наблюдаются на глубине торможения протонов с энергией 2 МэВ в меди, на оси абсцисс это область 107 мкм.

Радиационные повреждения, dpa

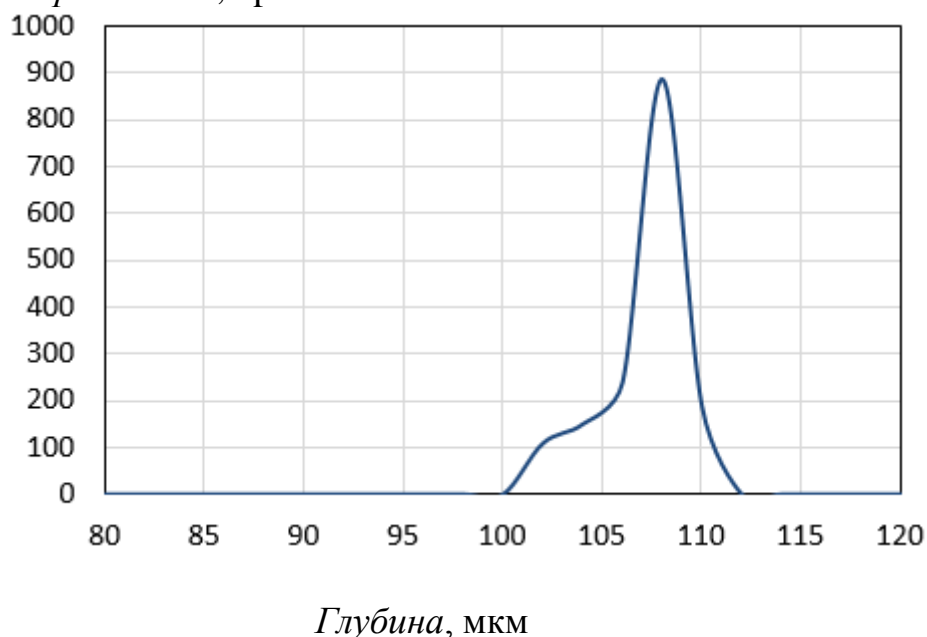


Рисунок 20 – Зависимость радиационных повреждений от глубины образца при облучении пучком протонов с энергией 2 МэВ, рассчитанная в программе SRIM с помощью функции “Detailed Calculation with full Damage Cascades” для образца с толщиной лития 100 мкм при флюенсе протонов $6,3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$

Затем литий был смыт водой, и образец исследован на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами Института

автоматики и электрометрии СО РАН (Новосибирск, Россия). Сенсоры CL1 MG200 и CL4 MG35 (Still SA, Франция) использованы для измерения профиля образца с разрешением 5,7 нм и 40 нм соответственно. Система перемещения образца позволяет измерять профиль образца на площади 200×200 мм с разрешением 100 нм, точностью позиционирования $\pm 0,4$ мкм и воспроизводимостью $\pm 0,1$ мкм. Фотография исследуемой поверхности образца представлена на рисунке 21. Стоит обратить внимание на отчетливый ореол темного цвета 1 толщиной 1 мм с внутренним диаметром 13 мм – он совпадает с расположением пучка протонов основной мощности. На рисунке 21 также видны центр медного диска мишени (2), блистеры, оставшиеся на периферии пучка протонов (3), и поверхность медного диска, не подвергнутая облучению протонами (4).

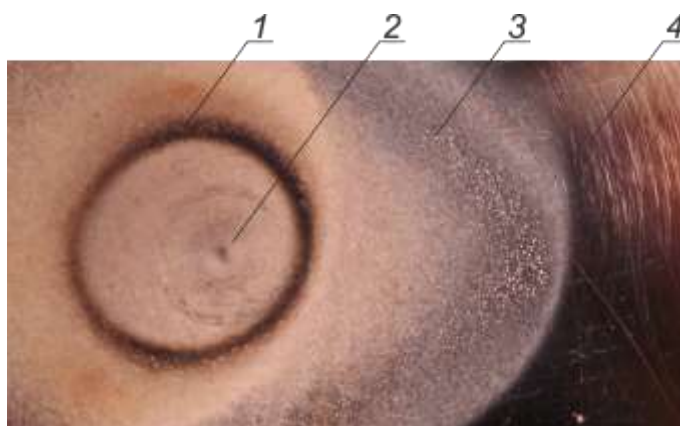


Рисунок 21 – Фотография исследуемой поверхности образца: 1 – ореол темного цвета, 2 – центр медного диска, 3 – блистеры, 4 – поверхность, не подвергнутая облучению протонами

Профиль поверхности образца измерен в прямоугольнике шириной 0,7 мм, длиной 84,9 мм с шагом 1 мкм; центр образца размещен вблизи центра области измерений. Профиль, измеренный вдоль большой стороны прямоугольника и проходящий через центр образца, представлен на рисунке 22. Здесь центр образца идентифицируется возвышением у координаты абсцисс 39500; ореол темного цвета, видимый на рисунке 21, идентифицируется сплошной заливкой у координат 35000 и 50000.

Первое, на что следует обратить внимание в измеренном профиле, это отсутствие ожидаемого углубления в области, подвергнутой интенсивному облучению пучком протонов (на рисунке 22 это область от координаты абсцисс 35000 до 50000). Считается, что “при флюенсах 10^{17} – 10^{20} см⁻² поверхностный слой частично или полностью отделяется от объема, что соответствует таким модификациям поверхности, как блистеринг (образование блистеров) и отслаивание чешуек (отшелушивание)” [12]. При флюенсах более 10^{19} см⁻², “значительно превышающих критические флюенсы начала блистеринга, блистеры и чешуйки удаляются в результате распыления. Поэтому на поверхность выходят глубинные слои” [12]. Согласно этим представлениям, облучение поверхности меди протонами флюенсом, в 200 раз превышающим флюенс начала блистеринга, должно приводить к значительной эрозии металла – разрушению поверхностного слоя металла в результате распыления и расслаивания. Поскольку глубина проникновения протонов в медь составляла 7 мкм, то в области интенсивного облучения пучком следовало ожидать углубления более 7 мкм, но этого не наблюдается. Удаления поверхностного слоя меди нет.

Объяснение данного явления может состоять в следующем. Поскольку медь покрыта тонким слоем лития, этот слой удерживает крышки блистеров и чешуйки от их удаления из этой области. Предположим, что от меди отделился слой толщиной 7 мкм (в виде крышек блистеров и чешуек), но литиевый слой удерживает их на месте, и этот отделившийся слой продолжает подвергаться воздействию протонов. Длительное воздействие протонов могло привести к разрушению кристаллических связей в этом отделившемся слое и перевести его в состояние аморфного тела. После окончания облучения, когда литий был смыт водой, можно было ожидать, что вместе с литием будет смыт и этот “аморфный” слой толщиной 7 мкм, но этого не произошло. Как будет показано далее, литий перемешался с медью, и этот слой литий-медь прочно удерживается на поверхности кристаллической меди, обеспечивая хорошую теплопроводность. Подчеркнем, что при данном объяснении использован термин “аморфная медь”.

Введение этого термина облегчает повествование, но в то же время требует проведения исследований для подтверждения существования аморфной меди.

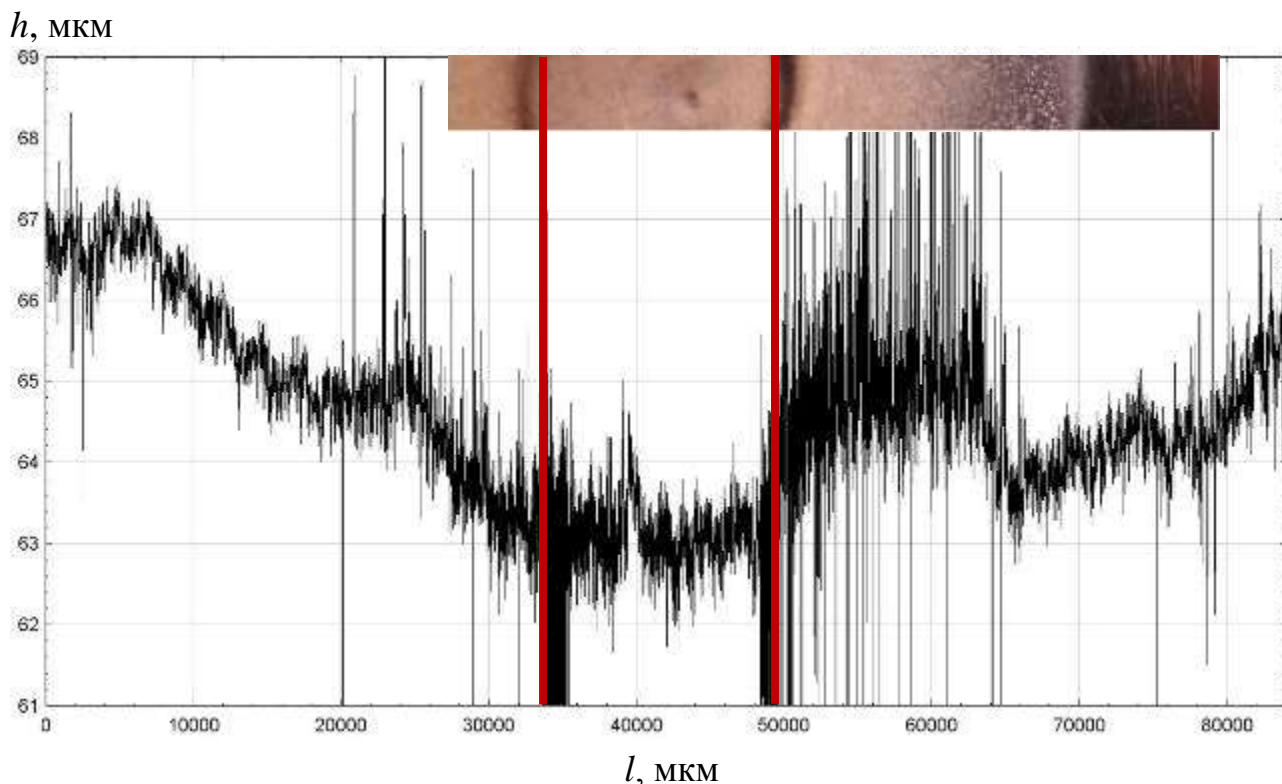
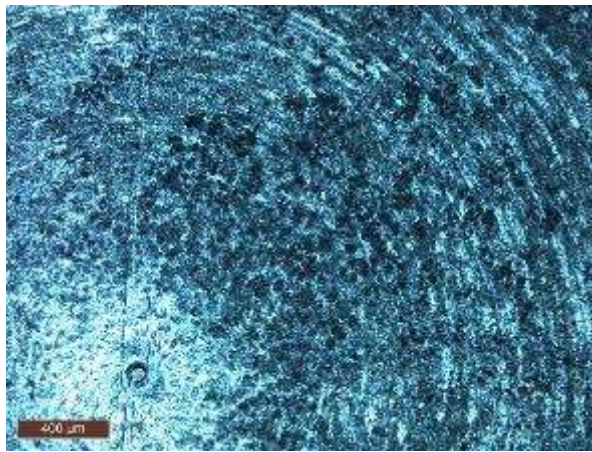


Рисунок 22 – Профиль образца вдоль линии, проходящей через его центр

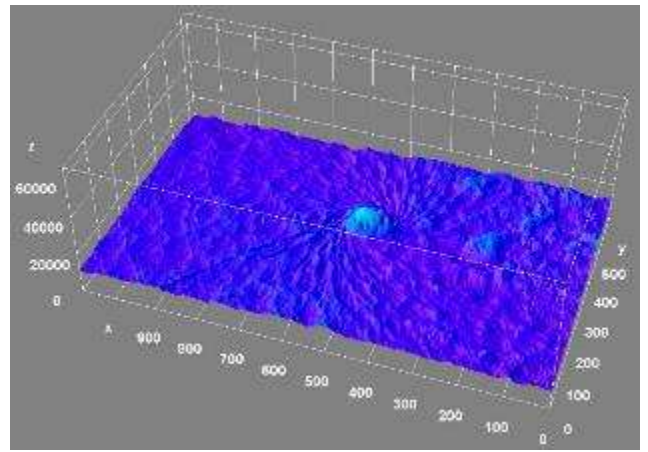
Представим подробнее результаты измерений сканирующего профилометра с конфокальными хроматическими сенсорами. Будем двигаться от центра мишени, подвергнутого интенсивному воздействию пучка протонов, к периферии вплоть до необлученной поверхности. На рисунке 23 представлено изображение центральной области мишени, двухмерный профиль поверхности и профиль вдоль линии, проходящей через центр мишени. Возвышение в центре высотой 3 мкм и шириной 100 мкм, вероятнее всего, обусловлено изготовлением медного диска на токарном станке. Этим же процессом обусловлены микронные углубления, расходящиеся по спирали от центра мишени. Никаких блистеров или кратеров внутри ореола темного цвета (*1* на рисунке 21) не наблюдается.

Профили поверхности ореола темного цвета (*1* на рисунке 21) представлены на рисунке 24. На графике профиля поверхности присутствует множество

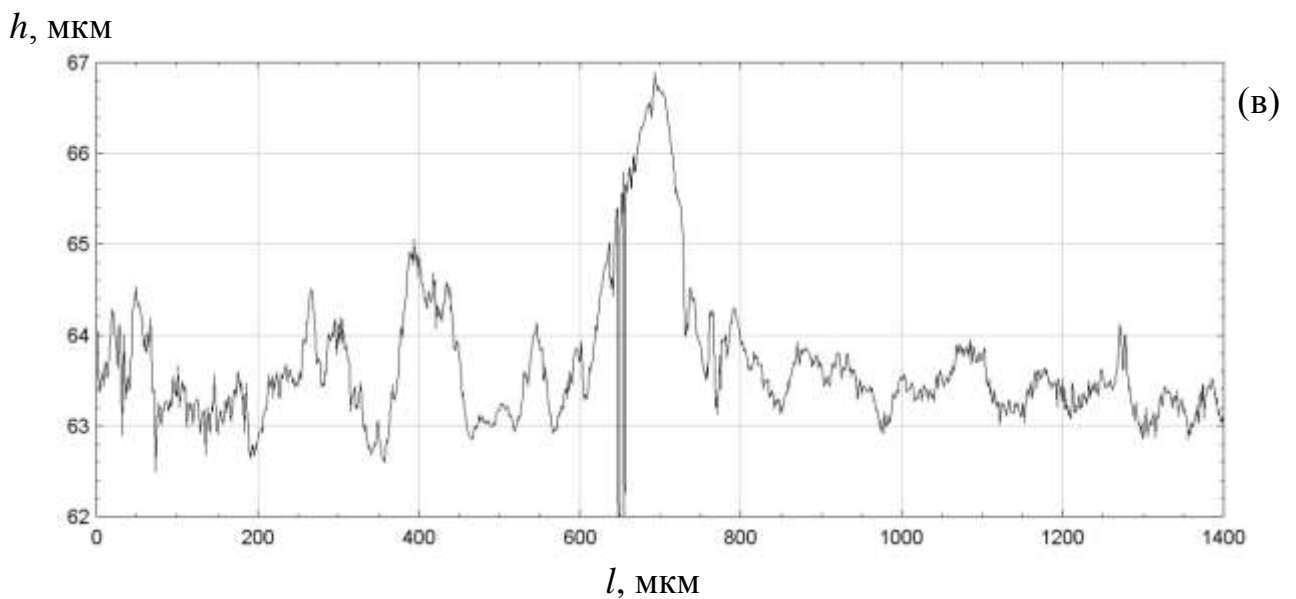
вертикальных линий, обозначающих наличие резких углублений, со склона которых не отражается сканирующий луч лазера. Вполне возможно, что такие мелкомасштабные углубления обусловлены тепловыми разрывами из-за значительного градиента плотности мощности. Вероятнее всего, этот ореол отделяет область высокого флюенса протонов, в десятки и сотни раз превышающего флюенс образования блистеров, от области низкого флюенса протонов, сопоставимого с флюенсом образования блистеров на поверхности меди. Это согласуется с размером пучка протонов.



(a)



(б)



(в)

Рисунок 23 – Изображение, полученное на электронном микроскопе DM 5000 Leica (а), двухмерный профиль (б) и профиль поверхности центральной области мишени вдоль линии, проходящей через ее центр (в)

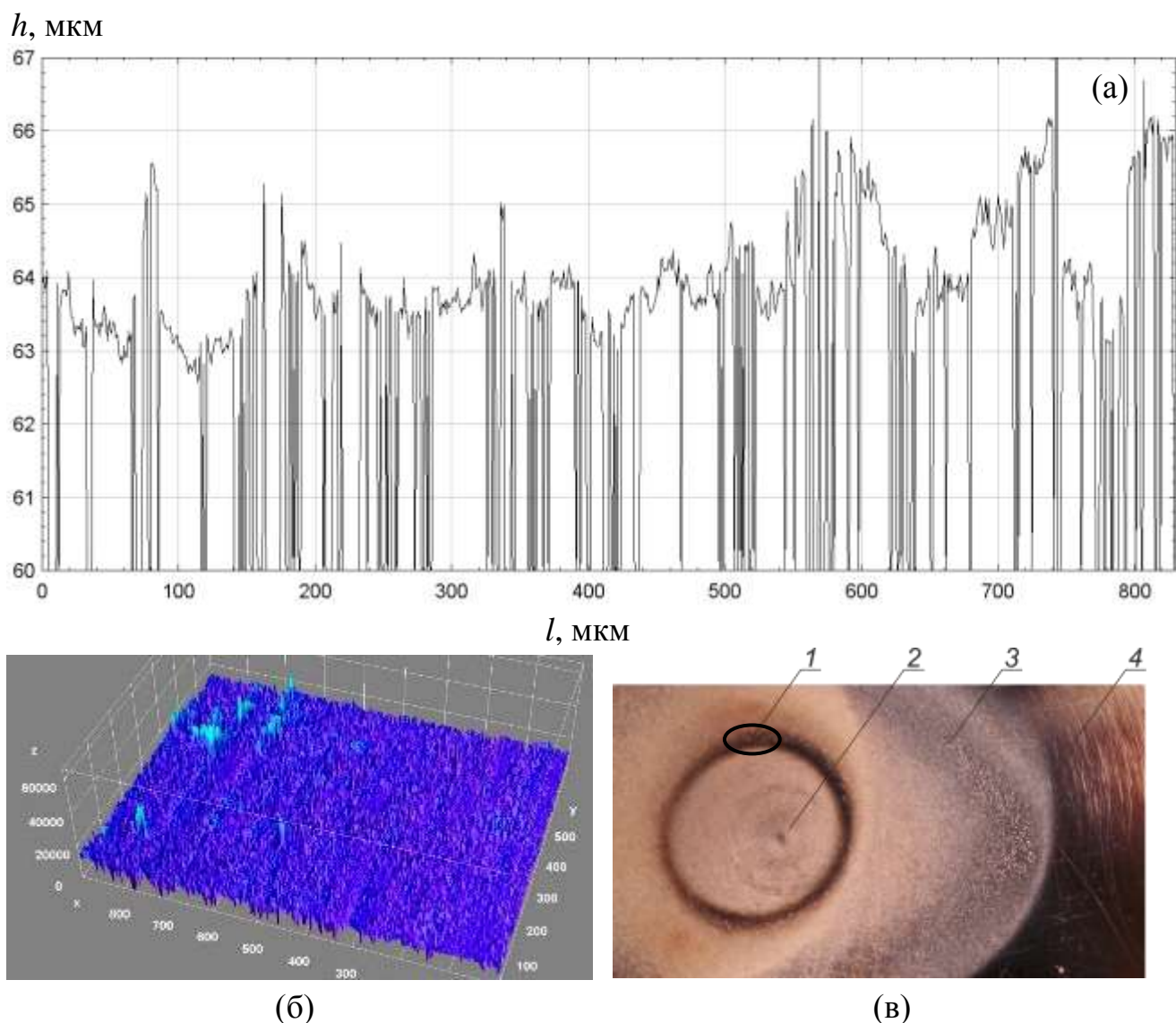


Рисунок 24 – Одномерный (а) и двухмерный профиль поверхности ореола темного цвета (б), обозначенного на изображении (в)

За пределами ореола темного цвета уже отчетливо можно увидеть блистеры и кратеры (на рисунке 22 это область от координаты абсцисс 20000 до 35000 и от 50000 до 65000). Эта область подвергнута облучению периферийной частью пучка протонов с флюенсом, сопоставимым с флюенсом образования блистеров. Ближе к центру можно наблюдать кратеры (рисунок 25 (а)) и блистеры с характерным размером 30 мкм (рисунок 25 (б)), дальше от центра пучка поверхность покрыта блистерами высотой 5–10 мкм и диаметром порядка 100 мкм (рисунок 25 (в, г)).

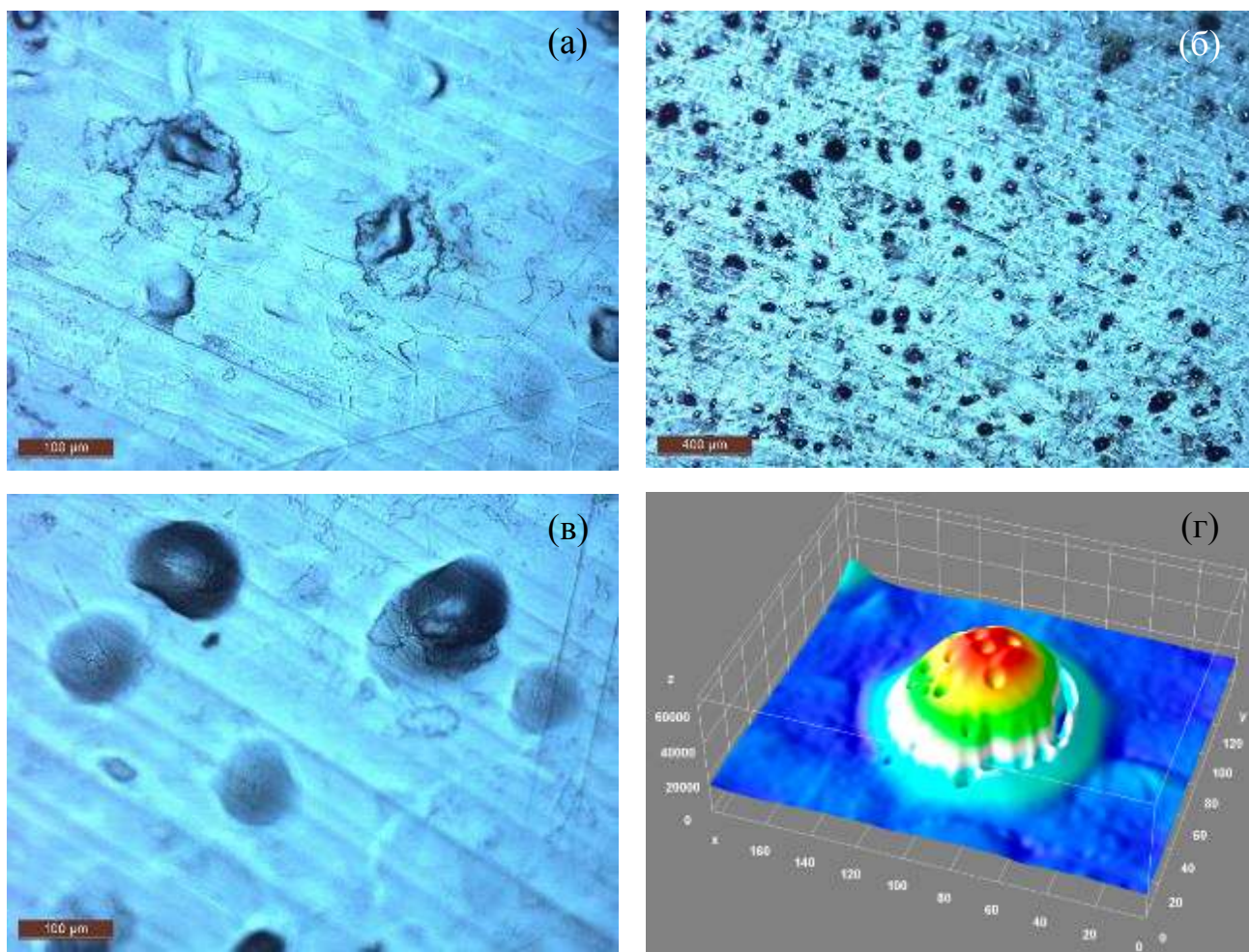


Рисунок 25 – Изображения поверхности меди, полученные на электронном микроскопе DM 5000 Leica: кратеры (а), блистеры (б) и (в), двухмерный профиль блистера, полученный на сканирующем лазерном профилемере (г)

Рельеф поверхности меди, не подвергнутой облучению, представлен на рисунке 26, где видна структура обработки изделия с шероховатостью менее 1 мкм.

Состав воды, которой литий был смыт с поверхности мишени, определен на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой параллельного действия с аксиальным и радиальным обзором плазмы ICPE-9820 (Shimadzu, Япония). В одном из образцов объемом 5 мл концентрация лития составила 215 ppm, а концентрация меди – 0,24 ppm, в другом – соответственно 365 ppm и 0,16 ppm. Видно, что содержание меди в воде незначительное. Этот факт указывает на то, что какое-либо значимое количество меди не было удалено с поверхности мишени при смыве лития водой.

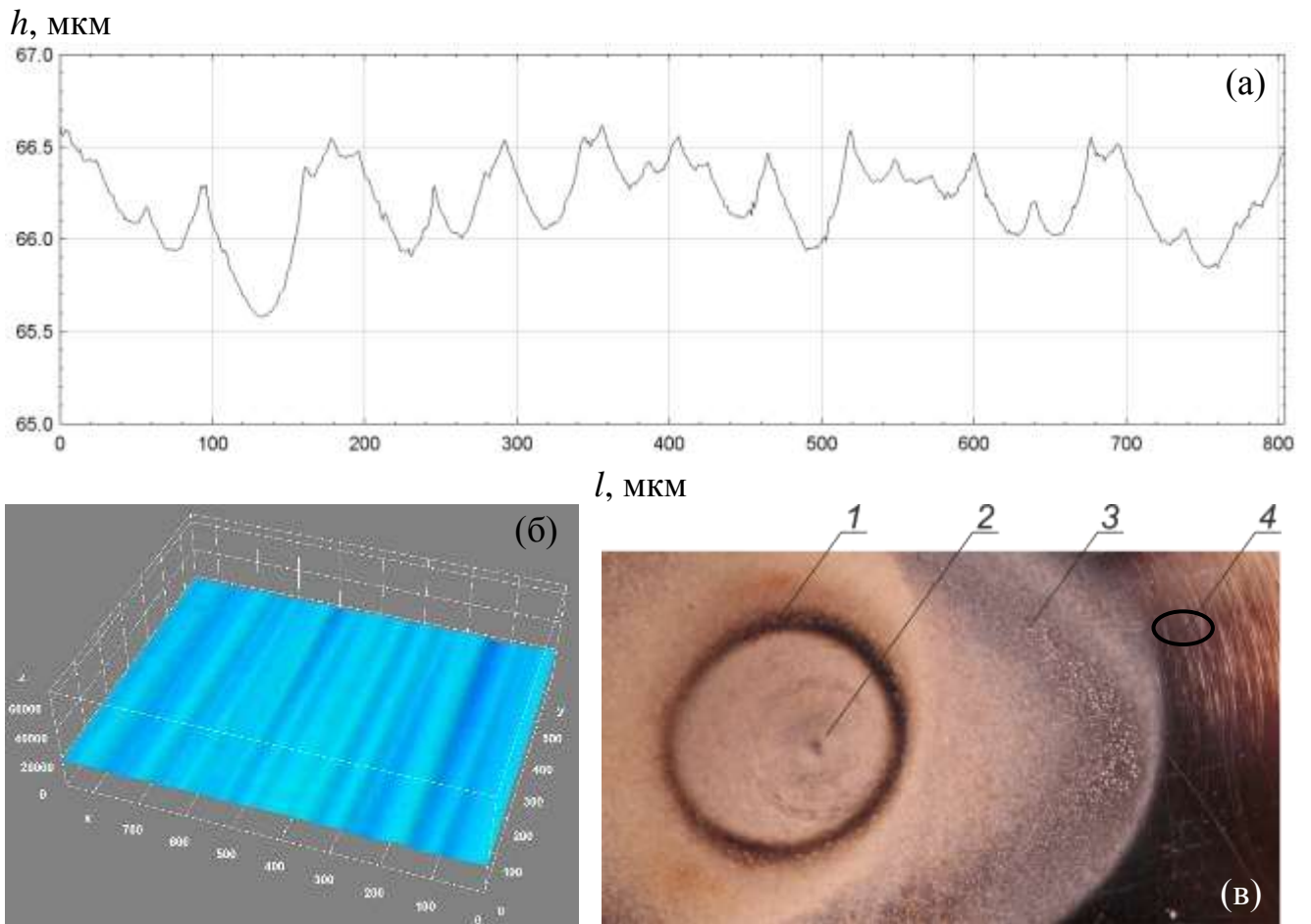


Рисунок 26 – Одномерный (а) и двухмерный профиль поверхности, не подвергнутой облучению протонами (б), обозначенной на изображении (в)

Основные результаты экспериментов серии I представим следующим образом:

1. Облучение 2 МэВ протонами мишени, выполненной в виде медного диска, на который нанесен тонкий слой лития, как и следовало ожидать, приводит к появлению блистеров на поверхности меди. Флюенс появления блистеров и их размеры соответствуют параметрам предыдущих исследований образования блистеров на поверхности меди без лития [28]. Блистеры на поверхности меди проявляются сквозь слой лития в виде возвышений. Уменьшения выхода нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из-за появления блистеров на поверхности меди не зарегистрировано.

2. Дальнейшее облучение мишени протонами приводит к постепенному исчезновению блистеров в области интенсивного облучения. Какой-либо эрозии

меди или удаления поверхностного слоя меди не обнаружено, что может быть обусловлено наличием тонкого слоя лития, удерживающего неизбежно возникающие медные чешуйки. Поскольку они никуда не удаляются, они подвергаются дальнейшему облучению протонами, и структура меди, вероятнее всего, из кристаллической переходит в “аморфную”. Уменьшения выхода нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из-за модификации структуры меди не зарегистрировано.

3. В результате длительного облучения мишени протонами через слой лития было пропущено протонов больше, чем содержится ядер лития в области размера пучка. В данном случае при толщине лития 84 мкм и флюенсе протонов $6,3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ это превышение составляет 1,62. Значительное количество водорода доставлено в приповерхностный слой меди. Этот водород в результате диффузии или через образовавшиеся трещины, как было замечено в работе [28], доходит до лития. Если бы водород вступил в химическую связь с литием и образовал гидрид лития, то выход нейтронов упал бы на 30 % [66]. Падение выхода не зарегистрировано, это означает, что выходящий из мишени водород, доставленный пучком протонов, не вступает в химическое соединение с литием.

2.2.2 Экспериментальные результаты. Серия II

Во второй серии экспериментов на медный образец напылен слой лития толщиной меньше толщины, на которой генерируют нейтроны в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$.

Исследуемый образец изготовлен из 99,99996 % крупнозернистой меди (Mitsubishi Materials Co., Япония). Порог образования блистеров на поверхности данного образца в 3,5 раза больше порога образования блистеров образца, использованного в первой серии экспериментов [28]. На образец напылен литиевый слой толщиной 9,6 мкм (использовано 27 мг лития). Образец облучают пучком протонов с током $500 \pm 10 \text{ мкА}$ в течение 7 дней по 4-5 ч в день. Полный интеграл тока протонов составил 14,9 мА·ч.

В отличие от первой серии экспериментов, когда облучение образца пучком протонов осуществляют при энергии протонов ниже порога генерации нейтронов и кратковременно выше для определения выхода нейтронов, во второй серии экспериментов – при энергии протонов выше порога генерации нейтронов: обычно 2,04 МэВ и кратковременно для измерения выхода нейтронов при энергиях от 1,9 до 2,17 МэВ.

Во второй серии экспериментов специально используют более стойкую к блистерингу медь с тем, чтобы в первый день облучения достовернее сравнить выход нейтронов до образования блистеров и после. На рисунке 27 представлена зависимость измеренного дозиметром № 2 выхода нейтронов, нормированного на ток протонов, от набранного интеграла тока протонов (отсутствие сигнала на графиках на рисунке 27 и рисунке 28 связано с калибровкой – в эти моменты времени изменяли энергию протонов). Порог образования блистеров в данном образце меди 0,52 мА·ч; на рисунке 27 он показан вертикальной линией. Видно, что никакого резкого изменения выхода нейтронов в области перехода через порог образования блистеров нет.

Временная зависимость дозы, измеряемая дозиметром 2, в другие дни облучения представлена на рисунке 28. Видно, что регистрируемый сигнал уменьшается в течение дня и уменьшается день за днем. В течение первых четырех дней сигнал уменьшается в среднем на 14 %, из которых 11,5 % – за счет уменьшения энергии протонов на 0,65 % из-за нагрева омического делителя (отмечено в параграфе 2.1) и 2,5 % – за счет реальной деградации выхода нейтронов.

Вероятнее всего, деградация выхода нейтронов связана с проникновением лития внутрь меди. Толщина литиевого слоя становится меньше, и выход нейтронов из него уменьшается. Дальше протоны начинают тормозиться в меди и, конечно, могут взаимодействовать с литием, проникшим внутрь меди, но энергия протонов уже может быть недостаточна для генерации нейтронов.

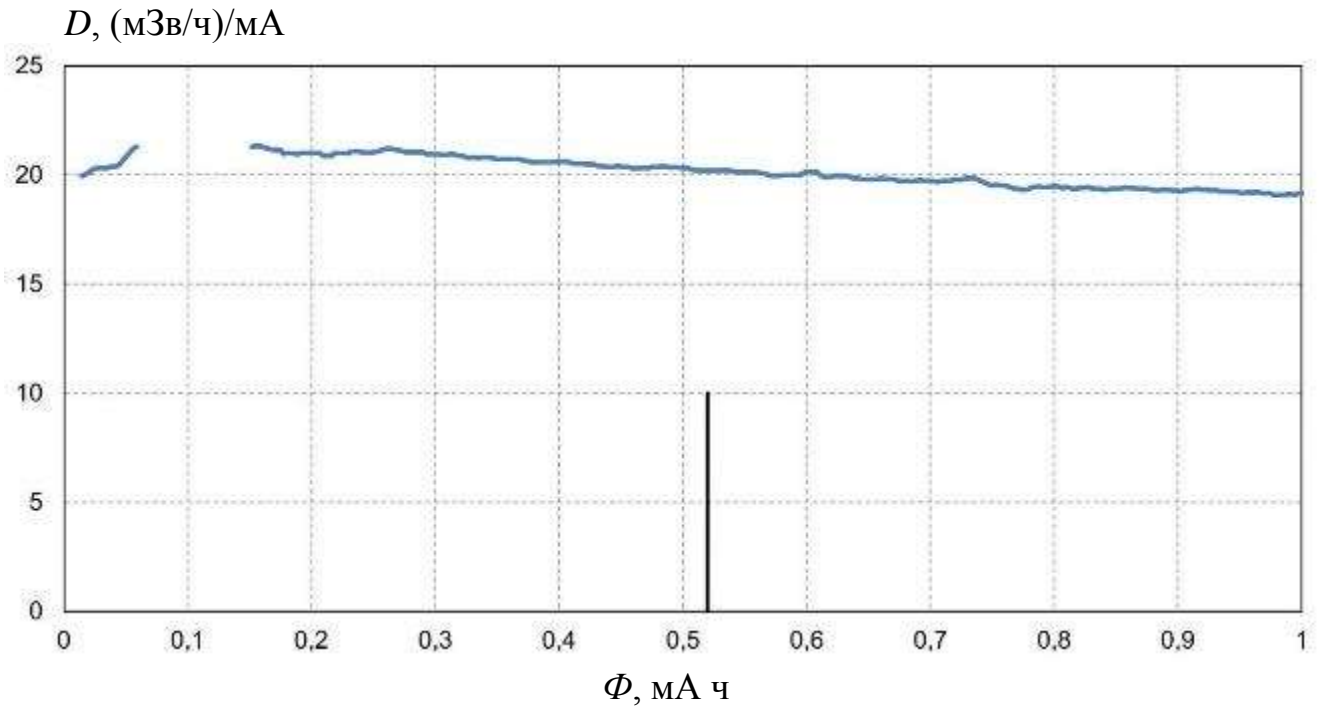


Рисунок 27 – Зависимость мощности дозы нейтронного излучения D от набранного интеграла тока протонов Φ в первый день облучения

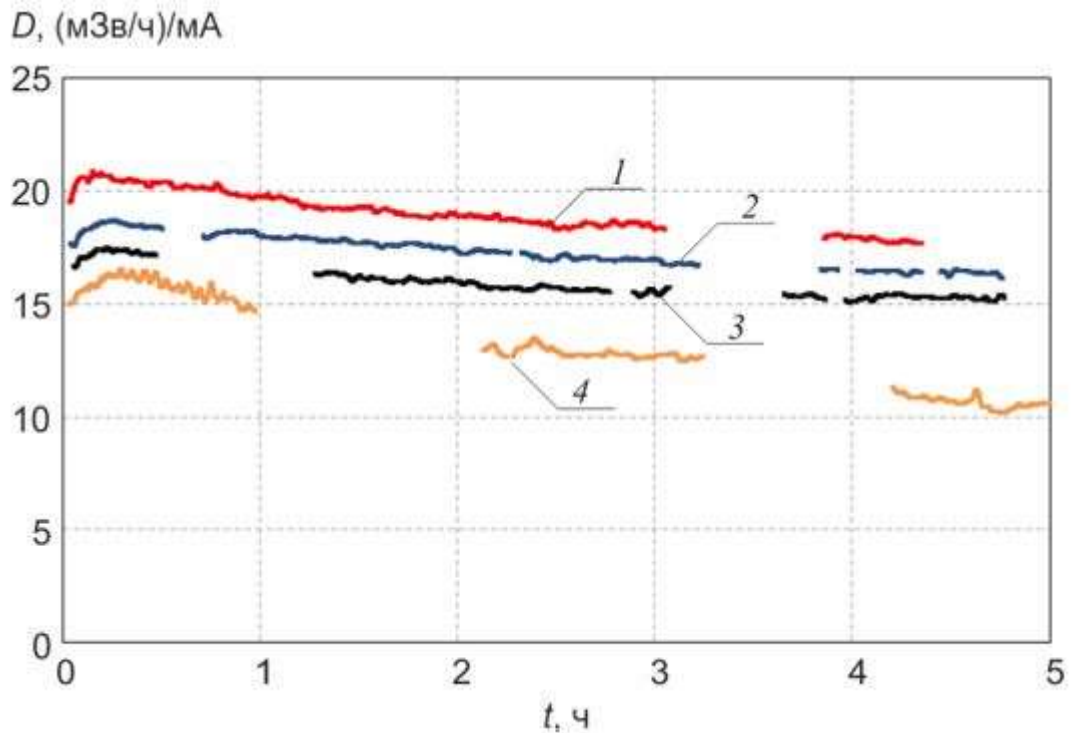


Рисунок 28 – Временная зависимость сигнала, измеряемая дозиметром № 2: 1 – в течение 2-го дня облучения, 2 – 4-го дня, 3 – 5-го дня, 4 – 6-го дня

На рисунке 29 представлены результаты проведенных измерений зависимости выхода нейтронов от энергии протонов, позволяющих откалибровать энергию по порогу генерации нейтронов и аккуратно измерить выход нейтронов. Здесь также видна деградация выхода нейтронов со временем. На рисунке 30 представлена зависимость выхода нейтронов от набранного флюенса протонов, на рисунке 31 – временная зависимость средней скорости счета детектора нейтронов в первый и седьмой день облучения.

D , отн. ед.

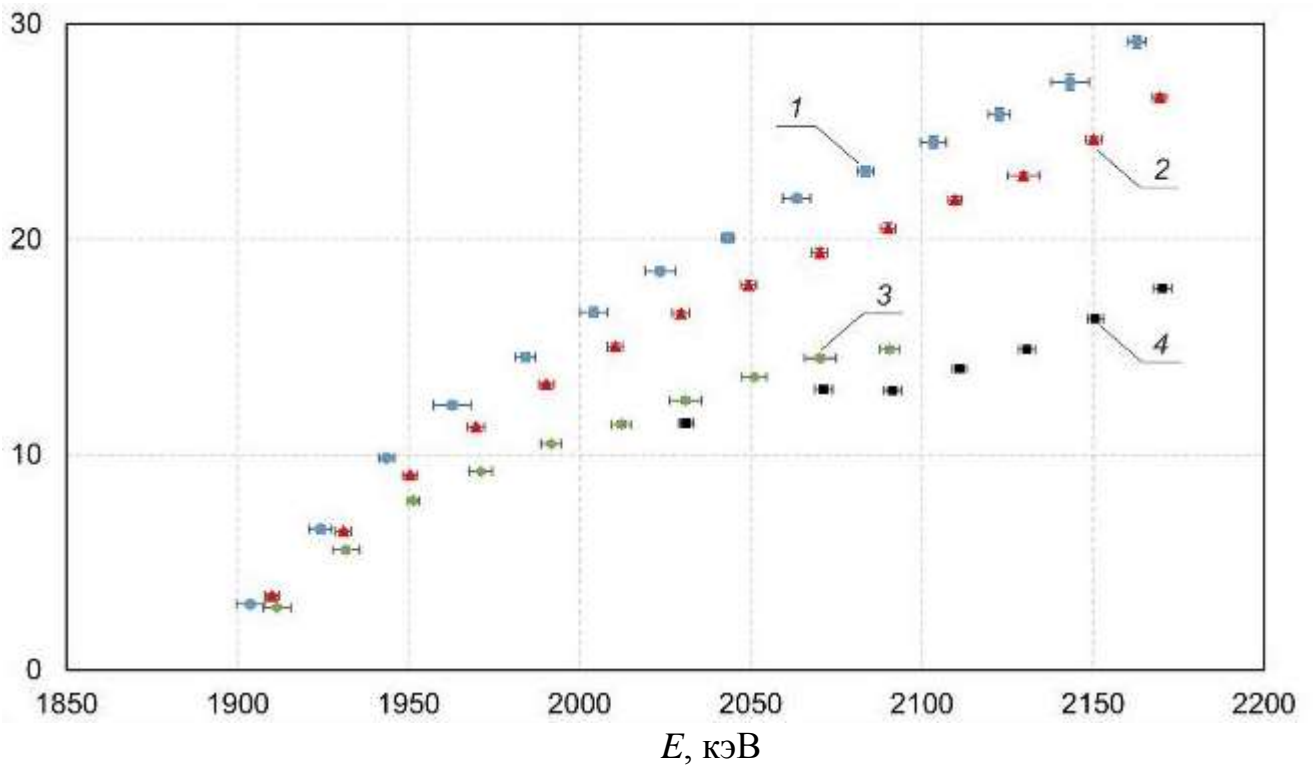


Рисунок 29 – Зависимость мощности дозы нейтронного излучения, измеряемая дозиметром № 2, от энергии протонов E в разные дни облучения: 1 – 1-й день облучения, 2 – 4-й, 3 – 6-й, 4 – 7-й день

Y , отн. ед.

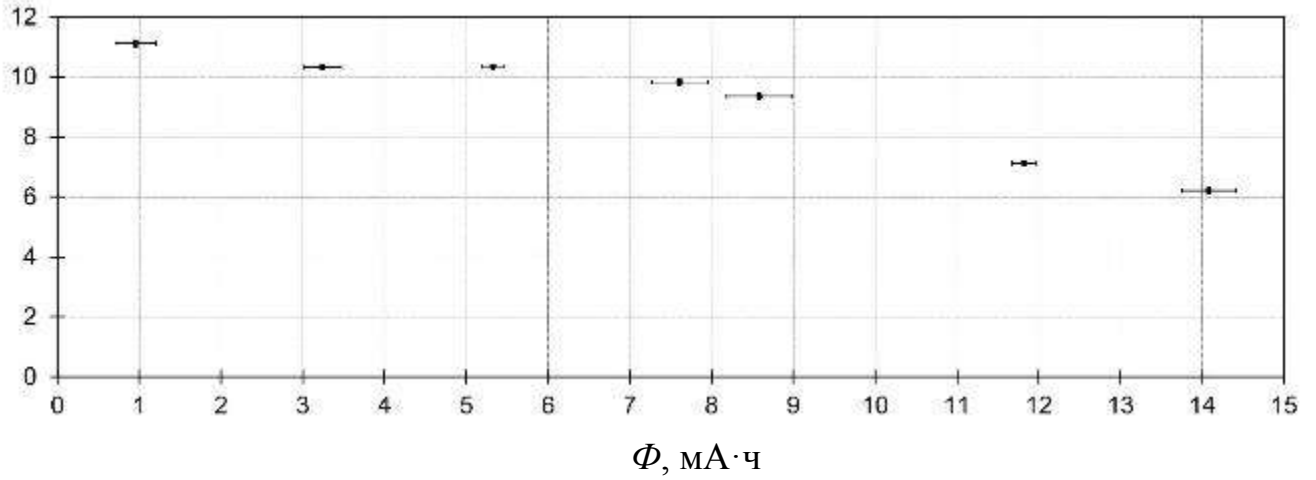


Рисунок 30 – Зависимость выхода нейтронов Y , измеренная дозиметром № 2, от набранного интеграла тока протонов Φ

Y , с⁻¹

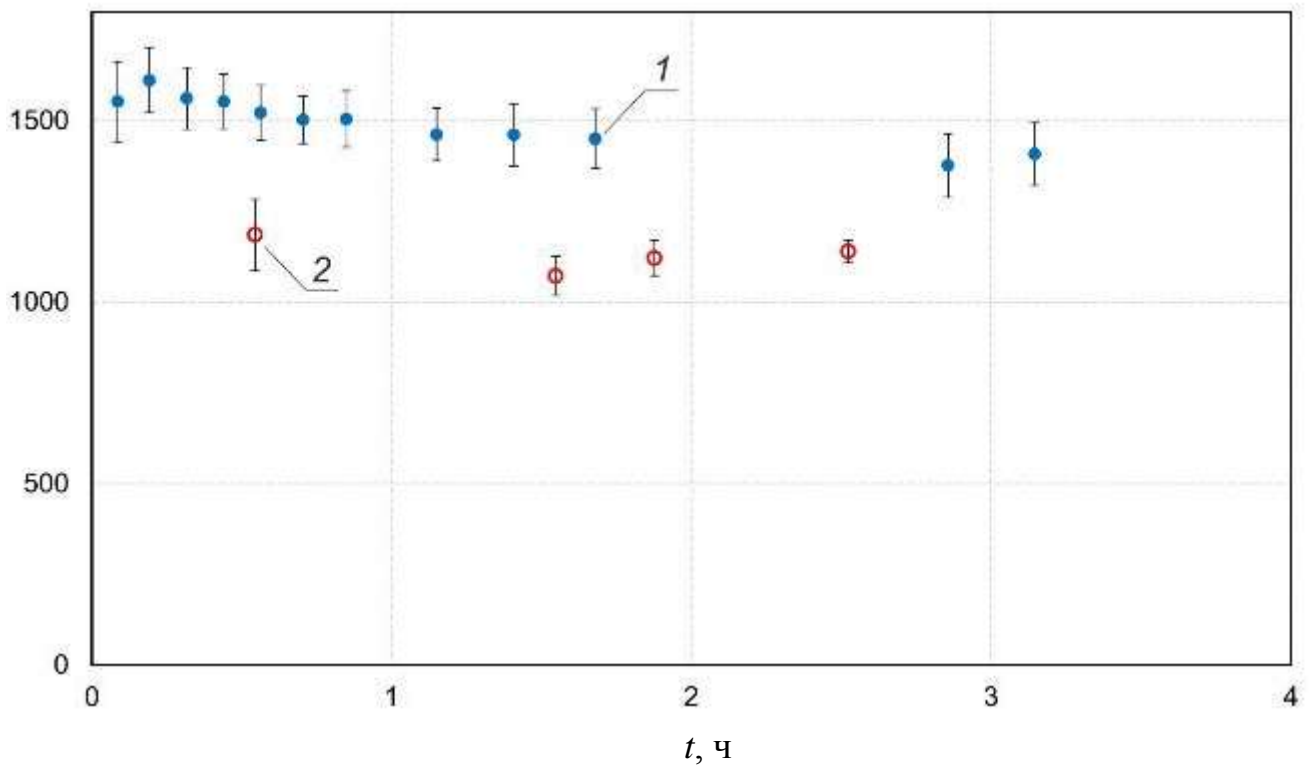


Рисунок 31 – Временная зависимость средней скорости счета детектора нейтронов в первый – 1 и седьмой день облучения – 2

Обобщая результаты проведенного исследования, можно констатировать следующее. В течение первых 4-х дней облучения выход нейтронов равномерно снижался на $2,5 \pm 1 \%$ в день, в сумме за 4 дня – на $10 \pm 1 \%$ до уровня $90 \pm 1 \%$ от

первоначального. В течение 5-го дня скорость деградации выхода нейтронов возросла – до $5 \pm 1\%$ в день, в течение двух последующих дней скорость деградации еще увеличилась – до $10 \pm 2\%$ в день. К окончанию облучения мишени (после семи дней) выход нейтронов составил $63 \pm 3\%$ от первоначального.

Известно, что генерация нейтронов в результате реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ сопровождается накоплением в литиевом слое радиоактивного изотопа бериллий-7, испускающего γ -кванты энергией 478 кэВ с периодом полураспада 53 дня. Можно было ожидать, что смывание лития водой приведет к дезактивации мишени, но такого в полной мере не случилось – скорость счета данной линии излучения, измеряемая спектрометром γ -излучения СЕГ-1КП-ИФТП на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия, снизилась до уровня 10 % от первоначальной. Вероятнее всего, литий вместе с образовавшимся бериллием проник внутрь меди и не был смыт водой.

Основные результаты экспериментов серии II представим следующим образом:

1. Появление блистеров на поверхности меди не приводит к изменению выхода нейтронов.
2. При толщине лития меньше длины пробега протона с начальной энергией до 1,882 МэВ (порога генерации нейтронов реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$) экспериментально зарегистрирована постоянная деградация выхода нейтронов из литиевой мишени.
3. Экспериментально установлено проникновение образующегося радиоактивного изотопа ${}^7\text{Be}$ внутрь медного диска, точнее, внутрь слоя, не смываемого водой.
4. Сделано предположение, что деградация выхода нейтронов обусловлена проникновением лития внутрь меди, из-за чего протоны с энергией выше порога генерации нейтронов начинают больше тормозиться на меди и меньше взаимодействовать с литием.

2.2.3 Экспериментальные результаты. Серия III

В третьей серии экспериментов образец сделан из 99,99 % меди (Mansfelder Kupfer und Messing GmbH, Германия). На образец напылен слой лития толщиной 68 мкм (использовано 189 мг лития). Образец облучают пучком протонов энергией 2 МэВ с током от 1 до 3 мА непрерывно в течение 4 ч.

Сначала ток пучка протонов был 1 мА. После того, как был набран флюенс протонов 1,9 мА ч, измерили зависимость мощности дозы нейтронного излучения от энергии протонов. Результат представлен на рисунке 32. Затем ток пучка протонов увеличили до 3 мА и визуально убедились, что при такой высокой мощности нагрева (8 кВт/см^2) литий под пучком протонов стал жидким, но он никуда не стекал (рисунок 33). После набора интеграла тока протонов $8,5 \text{ мА} \cdot \text{ч}$ зависимость мощности дозы нейтронного излучения от энергии протонов была измерена повторно. На рисунке 32 видно, что выход нейтронов упал на 36 %, хотя толщина слоя лития существенно превышает длину пробега протона с начальной энергией до порога генерации нейтронов.

После облучения мишень отсоединили от мишенного узла и смыли литий водой. Измерителем проводимости РНТ-028 Multi-parameter Water Quality Monitor (Shenzhen Handsome Technology Co., Ltd., Китай) измерена проводимость воды и определено содержание в ней лития (см. главу 4). Оно составило 171,6 мг, в то время как напыляли 189 мг. Отсюда следует, что 9,2 % лития осталось на мишени, что согласуется с предсказанием возможного проникновения лития внутрь меди, высказанным при формулировании основных результатов предыдущей серии экспериментов.

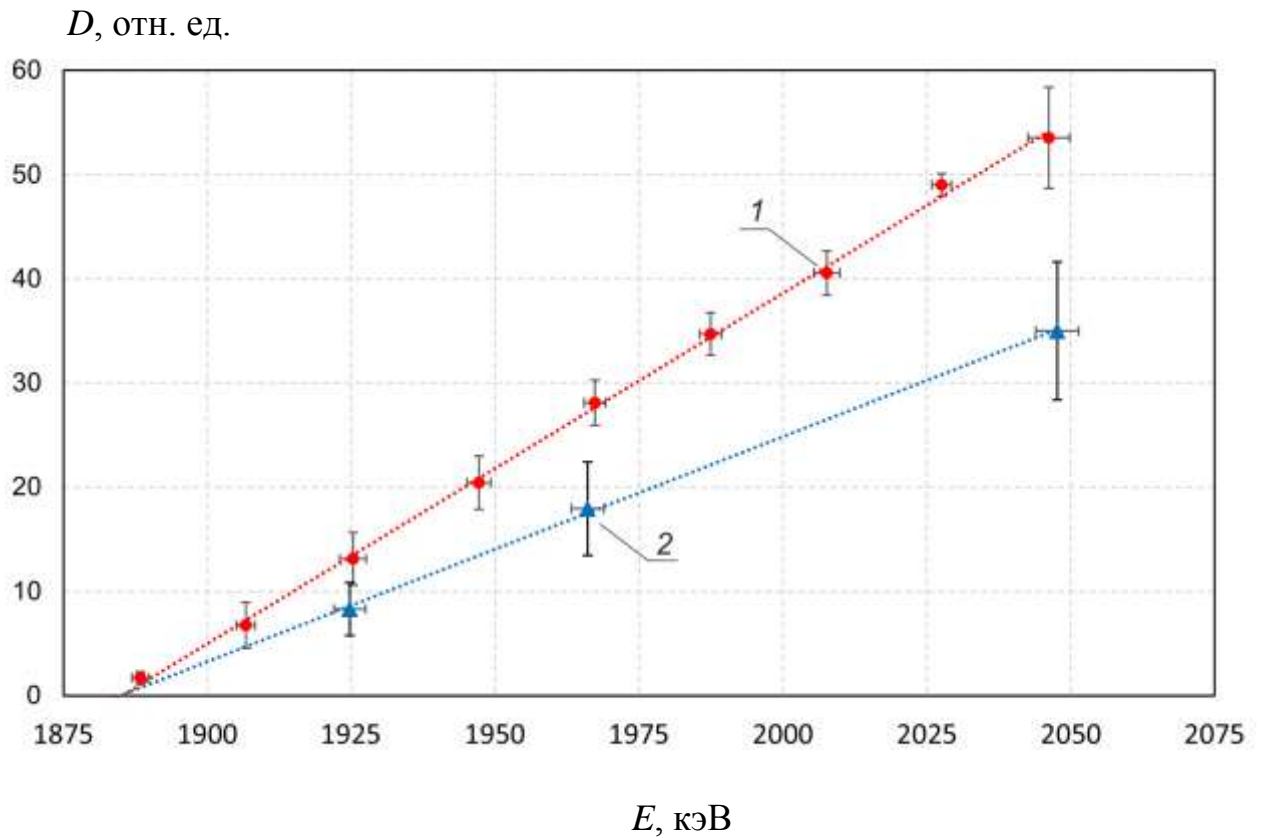


Рисунок 32 – Зависимость мощности дозы нейтронного излучения D от энергии протонов E для двух набранных интегралов тока протонов: 1 – 1,9 мА·ч, 2 – 8,5 мА·ч



Рисунок 33 – Изображение с видеокамеры. Область воздействия пучка протонов расположена ближе к центру

Фотографии мишени с литием до и после облучения и после удаления лития представлены на рисунке 34. Обратим внимание на хорошую однородность

напыления лития (а), на отслаивание литиевого слоя по периферии после облучения (б) и на значительную эрозию меди в области пучка протонов (в).

После удаления лития образец был исследован на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами. Фотография исследуемой поверхности и измеренный профиль приведены на рисунке 35. Видно, что поверхность меди подверглась серьезной эрозии – наблюдаются кратеры диаметром до 3 мм и глубиной до 0,2 мм.

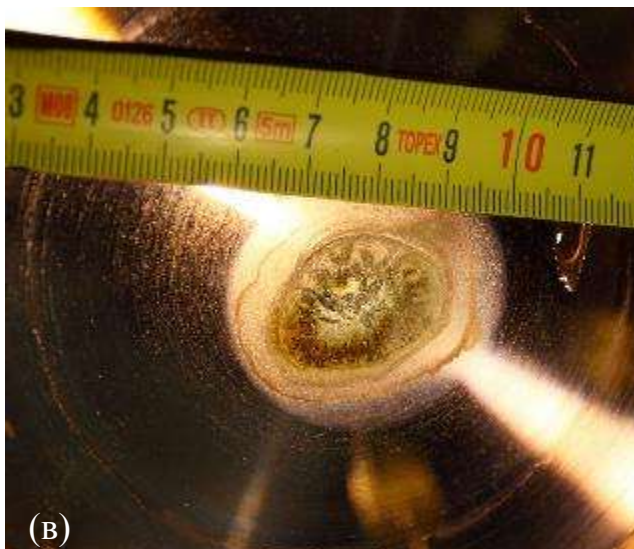
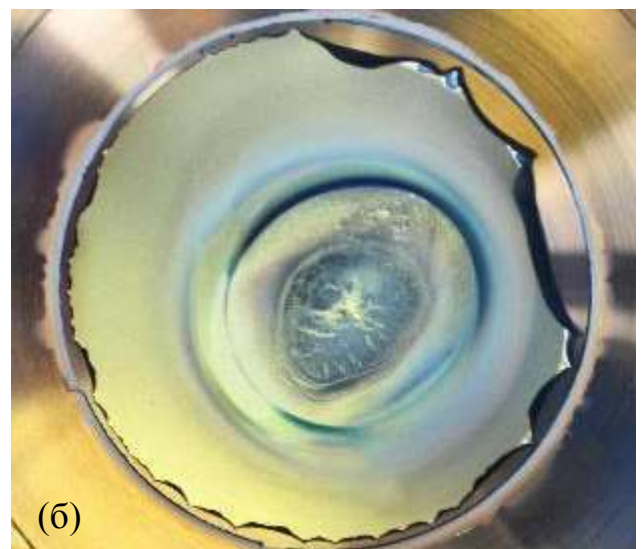
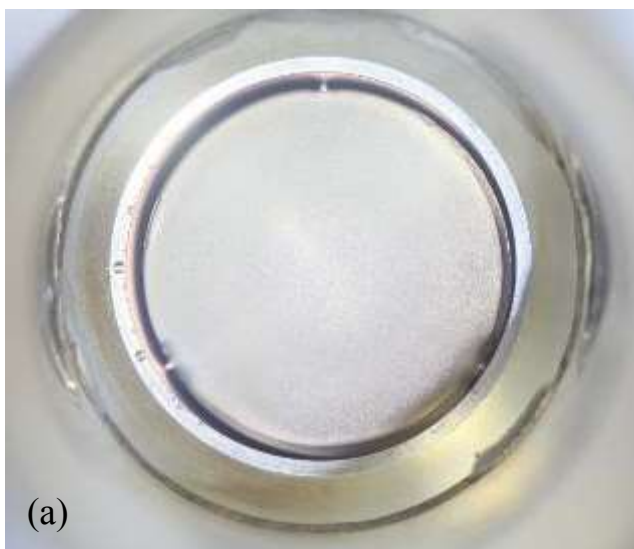
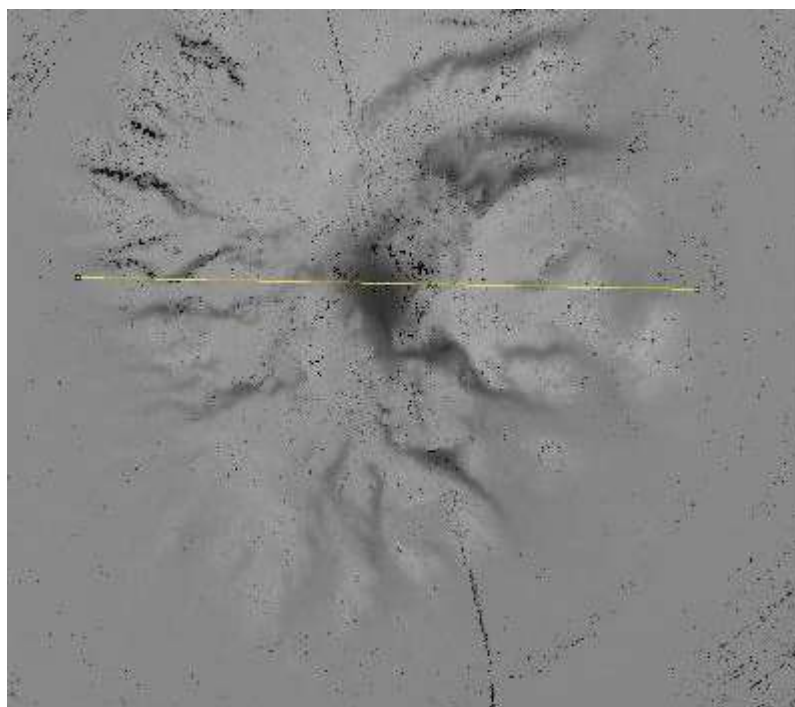
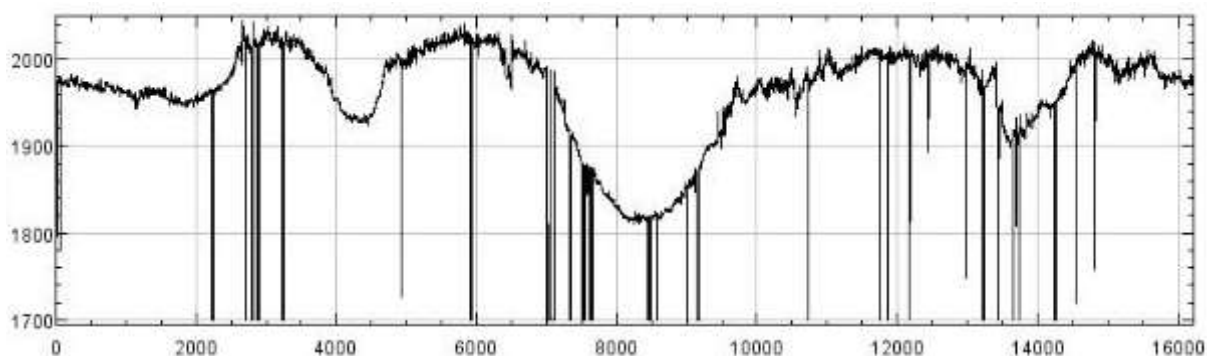


Рисунок 34 – Фотографии мишени перед облучением (а), после облучения (б) и после смыва лития (в)



(a)

 h , мкм

(б)

 l , мкм

Рисунок 35 – Фотография поверхности меди с линией измерения профиля (а) и измеренный профиль (б)

Затем из медного диска методом электроискровой резки вырезаны два образца размером $7 \times 7 \times 8$ мм (рисунок 36 (а)). Подготовленные образцы запрессовали в полимерную смолу на установке Buehler Simplimet 1000, отшлифовали и отполировали на автоматическом станке с постепенным уменьшением размера абразивных частиц до 3 мкм. Финишная полировка выполнена с применением коллоидного оксида кремния с размером частиц

0,05 мкм. На рисунке 36 (б) представлена фотография образцов в полимерной форме, подготовленных для исследования на микроскопе.



(а)



(б)

Рисунок 36 – Фотография подложки нейтроногенерирующей мишени, разрезанной для подготовки образцов; стрелки указывают на грани образцов, которые впоследствии были подвергнуты шлифовке, и при исследовании на микроскопе именно эти грани лежали в плоскости наблюдения(а); фотография образцов в полимерной форме, ориентированных шлифованной гранью по направлению к наблюдателю (б). Цифры на рисунке (а) соответствуют цифрам на рисунке (б)

Наблюдение за микроструктурой образцов проведено на растровом электронном микроскопе EVO 50 XVP (Zeiss, Германия) в двух режимах: 1) SE, в котором изображение получают путем выбивания из образцов вторичных электронов; данный режим позволяет получить информацию о рельефе; 2) BSD, в котором изображение получают с помощью обратно отраженных электронов; данный режим позволяет выявить различие в составе исследуемого образца: области с преимущественным содержанием более легких элементов на изображении будут темнее, чем области с более тяжелыми элементами. Для

изучения элементного состава методом рентгеноспектрального анализа использован детектор α -ACT SDD (Oxford Instruments, Великобритания). Образцы облучают пучком электронов с энергией 20 кэВ и с током порядка несколько пикоампер.

Из множества полученных изображений представим два. На рисунке 37 представлено характерное изображение микростыка двух образцов. По центру изображений проходит линия раздела образцов. Протонный пучок падает на поверхности от линии стыка в сторону каждого образца, исследование проводится для области, перпендикулярной направлению протонного пучка. На рисунке 37 (а) – общий вид стыка, рисунок 37 (б) – область стыка приближена. Отчетливо видно, что от поверхности вглубь образца образовался слой, который выглядит темнее, чем основной материал образца. Толщина слоя порядка 35 мкм на каждый образец. Поскольку глубина проникновения протонов в медь составляет 7 мкм, можно утверждать, что модификации подвергается поверхность меди толщиной больше пробега протона.

На рисунке 38 представлены изображения области максимальной эрозии. Особенности этого изображения в том, что i) на нем видно изображение только одного образца, поскольку между образцами в этом месте было свободное пространство, ii) виден не только срез, но и поверхность, подвергнутая облучению протонами, но не подвергнутая никакой обработке, включая шлифование. Этот слой толщиной порядка 15 мкм виден на рисунке 38 (а) в виде чешуек между светлым изображением обработанного среза образца и темным изображением свободного пространства. После снятия этого изображения образец был подвергнут травлению 50 %-м раствором азотной кислоты и повторному наблюдению этой же области. На рисунке 38 (б) видно, что этот слой чешуек после травления пропал. Вероятнее всего, на рисунке 38 (а) удалось получить изображение слоев меди (чешуек), отделившихся от медного образца в результате образования блистеров и перемещавшихся с литием, проникающим внутрь меди.

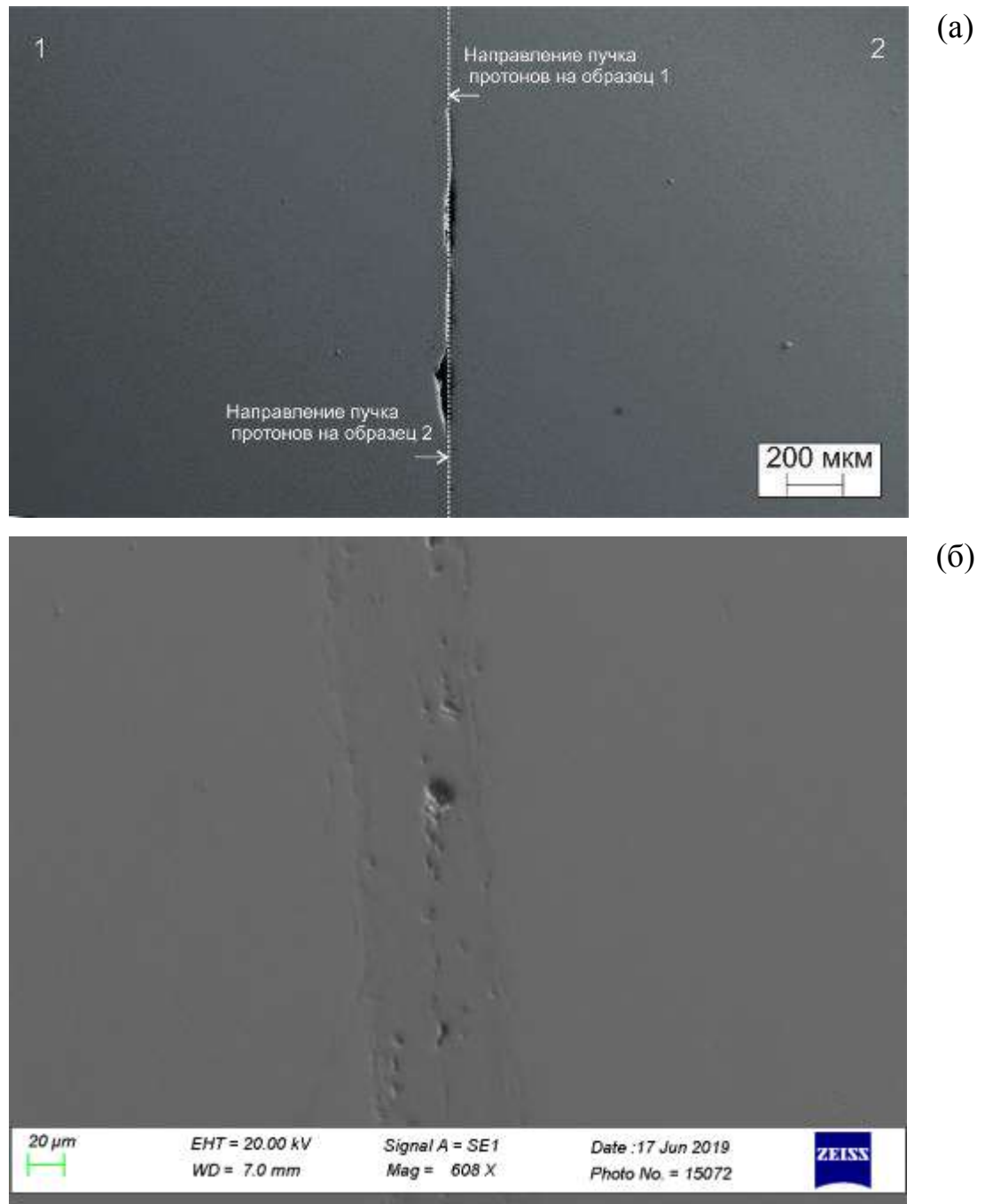


Рисунок 37 – Изображение области стыка образцов. Нумерация образцов 1, 2 соответствует нумерации на рисунке 36

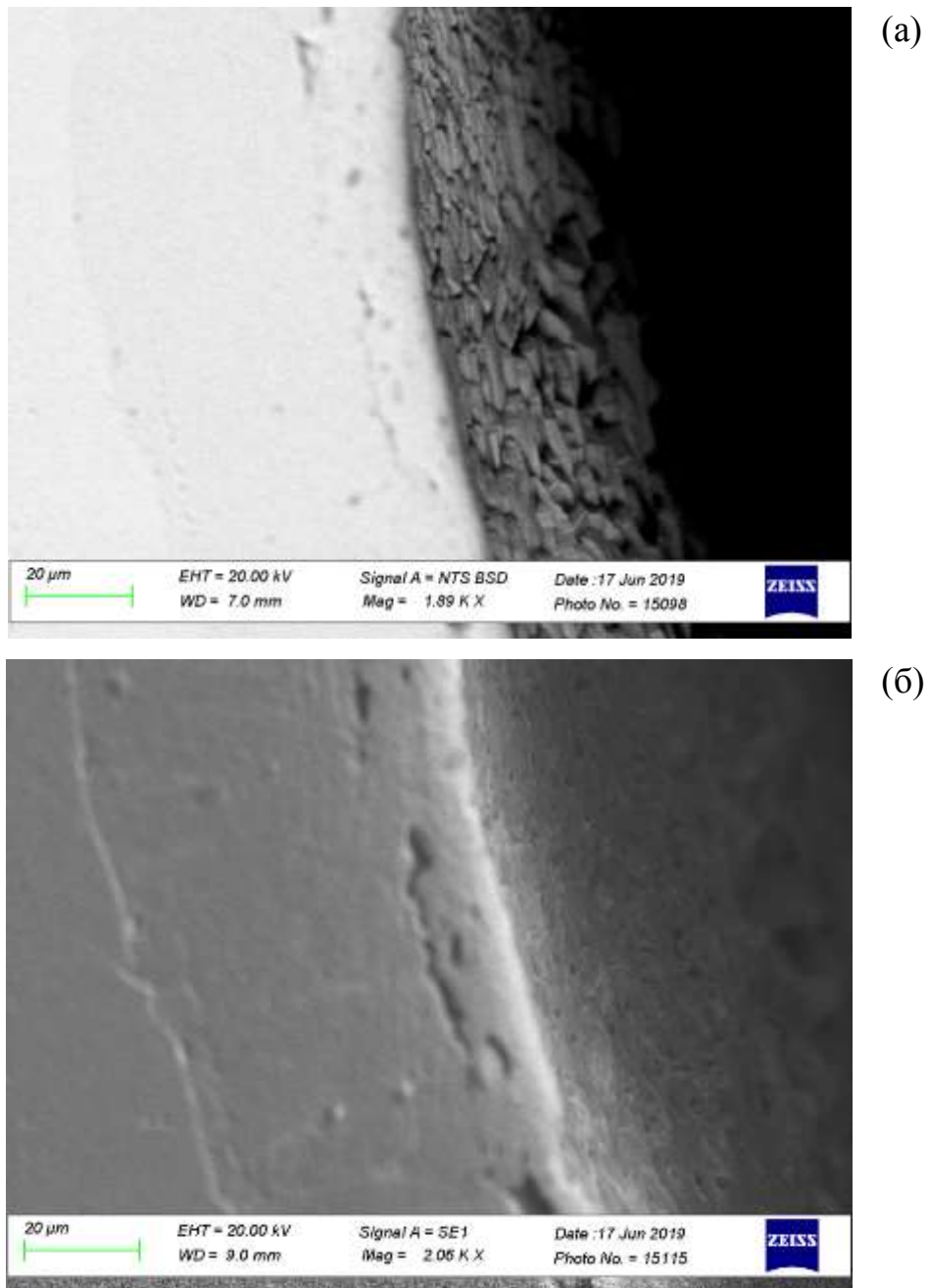
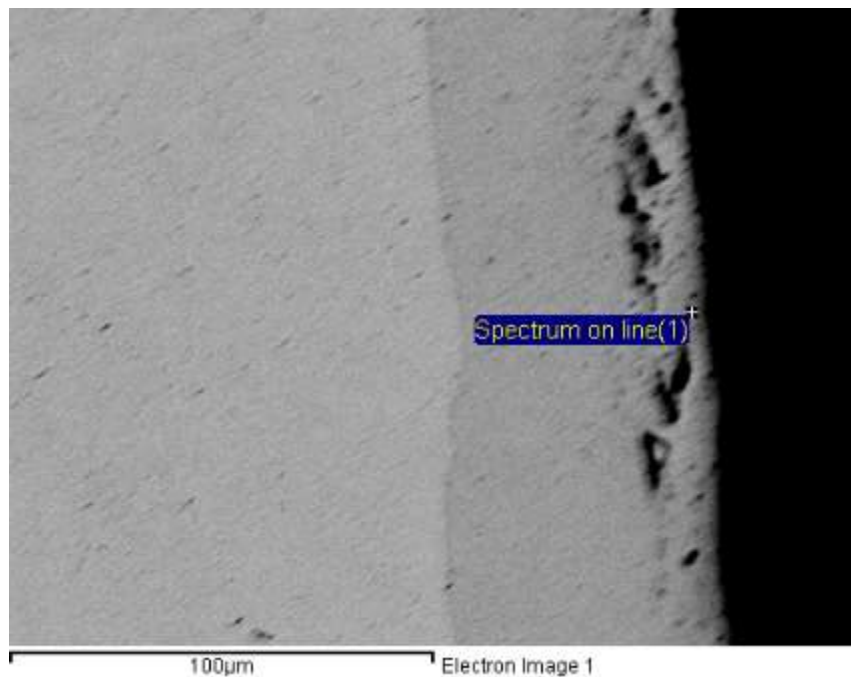


Рисунок 38 – Изображение области максимальной эрозии

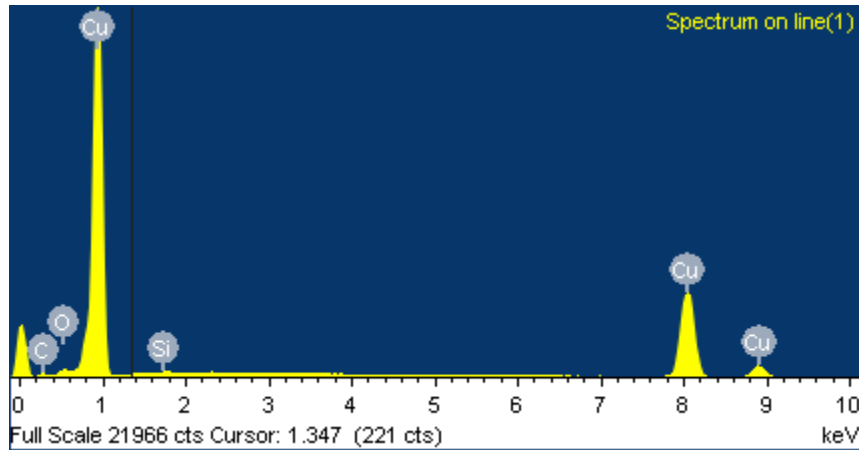
Рентгеноспектральный анализ элементного состава различных слоев образцов позволил определить содержание меди, кислорода и углерода в различных слоях образцов, но не позволил идентифицировать литий, поскольку его характеристическое излучение имеет величину 40 эВ и приходится на область низких энергий, достоверно не регистрируемых детектором. На рисунке 39 представлено изображение образца с указанием места измерения спектра и

измеренный спектр. В области толщиной порядка 35 мкм, подвергнутой модификации (она располагается между более светлой областью и темной), весовое содержание меди составляет величину от 92 до 94 %, углерода – от 3 до 5 %, кислорода – от 1,5 до 2 %, кремния – от 0,4 до 0,6 %. Наличие кремния и углерода объясняется особенностями обработки образцов. В области, не подвергнутой модификации (она слева на рисунке), весовое содержание меди составляет от 95,5 до 96 %, углерода – от 2,2 до 2,4 %, кислорода – от 1,4 до 1,5 %, кремния – от 0,5 до 0,6 %. Достоверно можно утверждать только то, что подвергнутый модификации слой меди более пористый, чем не подвергнутый модификации.



(a)

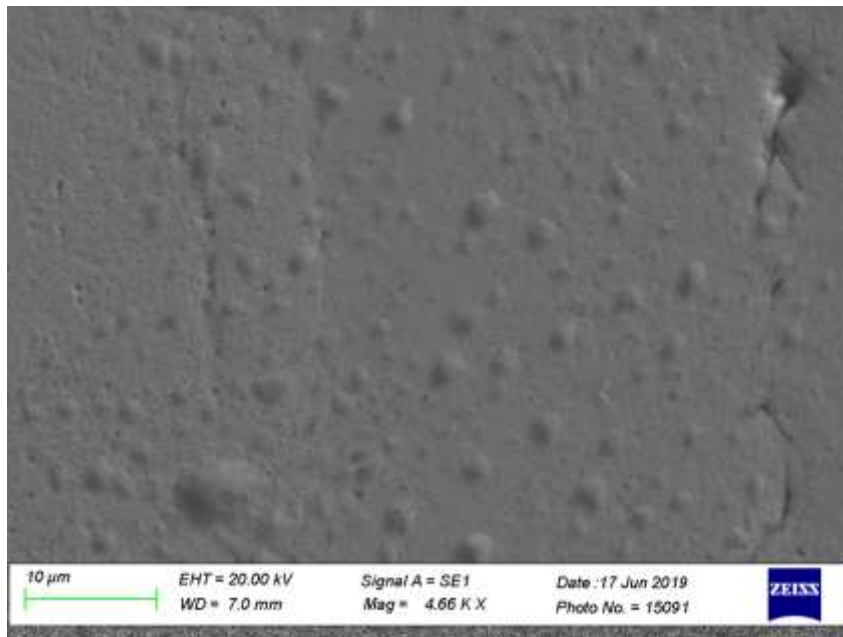
Рисунок 39 – Рентгеноспектральный анализ: срез образца с указанием точки, для которой получен спектр (а), рентгеновский спектр (по оси x – энергия рентгеновского излучения образца в килоэлектронвольтах, по оси y – интенсивность излучения) (б)



(б)

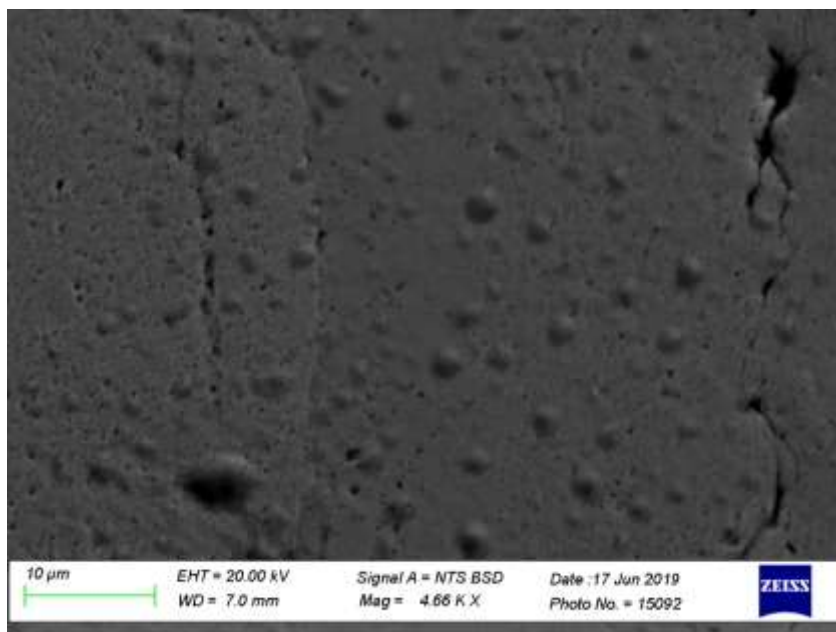
Продолжение рисунка 39

В процессе проведения исследований на поверхности образцов обнаружены пятна или пузырьки микронного размера, природа которых не была выяснена. На рисунке 40 представлены изображения поверхности при двух режимах электронного микроскопа. Поскольку изображения не отличаются существенно, то можно сделать вывод, что наблюдаемые образования являются рельефом поверхности, а не химическими соединениями.



(a)

Рисунок 40 – Изображения одной и той же области, сделанные при разных режимах включения электронного пучка микроскопа: вторичные электроны SE (a), обратно отраженные электроны BSD (б)



(б)

Продолжение рисунка 40

Основные результаты экспериментов серии III представим следующим образом:

1. При высокой плотности мощности пучка протонов литий, нанесенный на медь, становится жидким, но не стекает.
2. Несмотря на то, что толщина лития больше длины пробега протона с начальной энергией до порога генерации нейтронов, по мере облучения наблюдается деградация выхода нейтронов.
3. Интенсивное облучение протонами приводит к значительной эрозии меди и, возможно, к проникновению лития глубже места остановки протонов. Интенсивное взаимодействие меди с литием отмечено в диссертации Адама Броуна [70].
4. Получено изображение слоя, вероятнее всего, состоящего из лития и чешуек меди, отделившихся от медного образца в результате образования блистеров. Этот слой не был смыт водой, но был удален травлением.

2.2.4 Экспериментальные результаты. Серия IV

Целью четвертой серии экспериментов было выяснить, проникает ли литий в медь при напылении, или при облучении протонами до появления блистеров, или только при облучении протонами после появления блистеров.

Эксперимент проводят в несколько другой геометрии, чтобы уменьшить плотность тока пучка протонов и иметь возможность облучать мишень в течение заметного времени до момента появления блистеров. Мишень, изготовленную из меди чистотой 99,996 %, размещают в вертикальной части тракта транспортировки пучка протонов после поворотного магнита и магнитного сканера – в месте ее обычного размещения при проведении биологических исследований [55, 56]. При таком размещении мишени дозиметр № 2 (8 на рисунке 13) оказался на расстоянии 6,4 м от мишени под углом 136° к направлению пучка протонов. Мишень облучают пучком протонов диаметром 4 см, током 1 мА, энергией от 1,85 до 2,25 МэВ в течение 40 минут. При набранном интеграле тока 0,66 мА ч и диаметре пучка 4 см максимальный флюенс протонов составил $1,15 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$, что почти в 4 раза меньше порога образования блистеров [28].

Сначала облучают две аналогичные мишени с толщиной слоя лития 1 мкм с той лишь разницей, что у второй мишени слой лития перед облучением был смыт водой. На рисунке 41 представлена зависимость мощности дозы, измеряемой дозиметром, от энергии протонов при облучении этих двух образцов, при этом регистрируемый сигнал от мишени со смытым литием увеличен в 500 раз для удобства сравнения. Видно, что выход нейтронов с мишени, с поверхности которой водой был смыт литий, в 700 раз меньше. Этот факт указывает на то, что при напылении лития на медный диск, охлаждаемый воздухом, не происходит заметного проникновения лития в медь. Стоит обратить внимание на рисунке 34 (б), на котором видно, что после облучения мишени литиевый слой на периферии отделился от медной подложки, что указывает на слабую адгезию лития с медью.

σ , мбарн D , отн. ед.

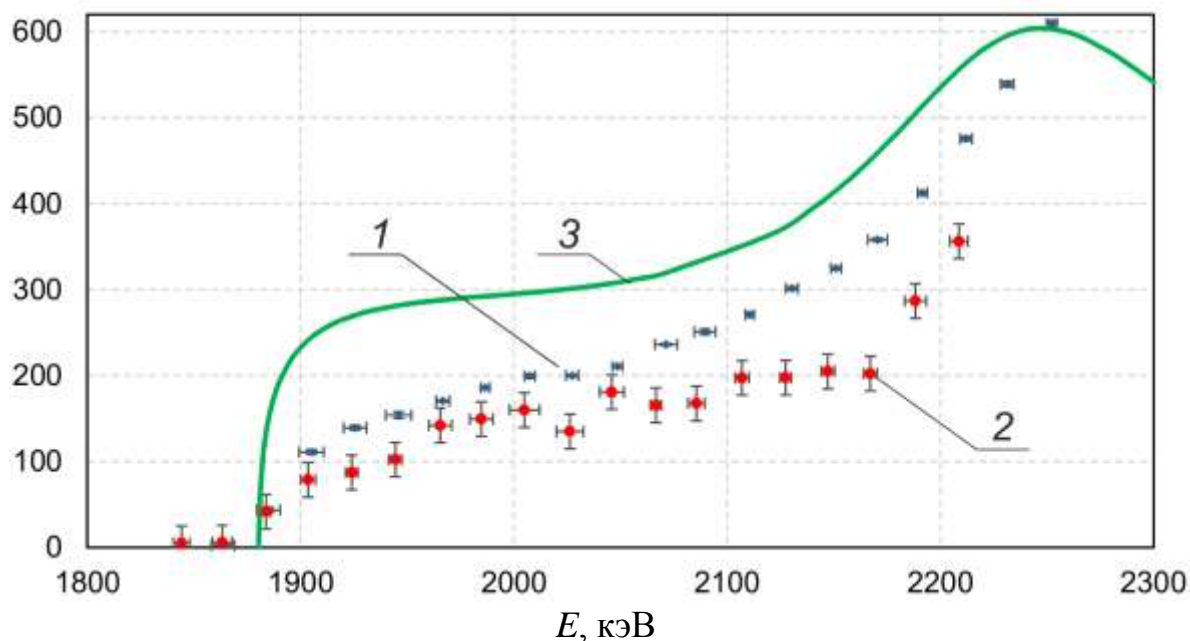


Рисунок 41 – Зависимость мощности дозы нейтронного излучения D от энергии протонов при облучении мишени с литиевым слоем толщиной 1 мкм (1, синие ромбы) и мишени с предварительно смытым слоем лития (2, красные кружки; значения умножены на 500). Для справки приведена зависимость сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ от энергии протонов (3, сплошная линия зеленого цвета)

Затем облучают мишень с литиевым слоем толщиной 10 мкм. После облучения мишень снимают и помещают в разработанный γ -спектрометрический комплекс, состоящий из спектрометра γ -излучения СЕГ-1КП-ИФТП на основе полупроводникового детектора, выполненного из особо чистого германия, свинцового коллиматора толщиной 50 мм с отверстием 2,5 мм и 2D подвижного управляемого стола [95]. На рисунке 42 представлен скриншот программы управления с результатом измерения. Видно, что из области размером 40 мм испускаются γ -кванты энергией 478 кэВ в результате распада атомных ядер ${}^7\text{Be}$, образовавшихся в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Эта область совпадает с расположением и размером пучка протонов на мишени.

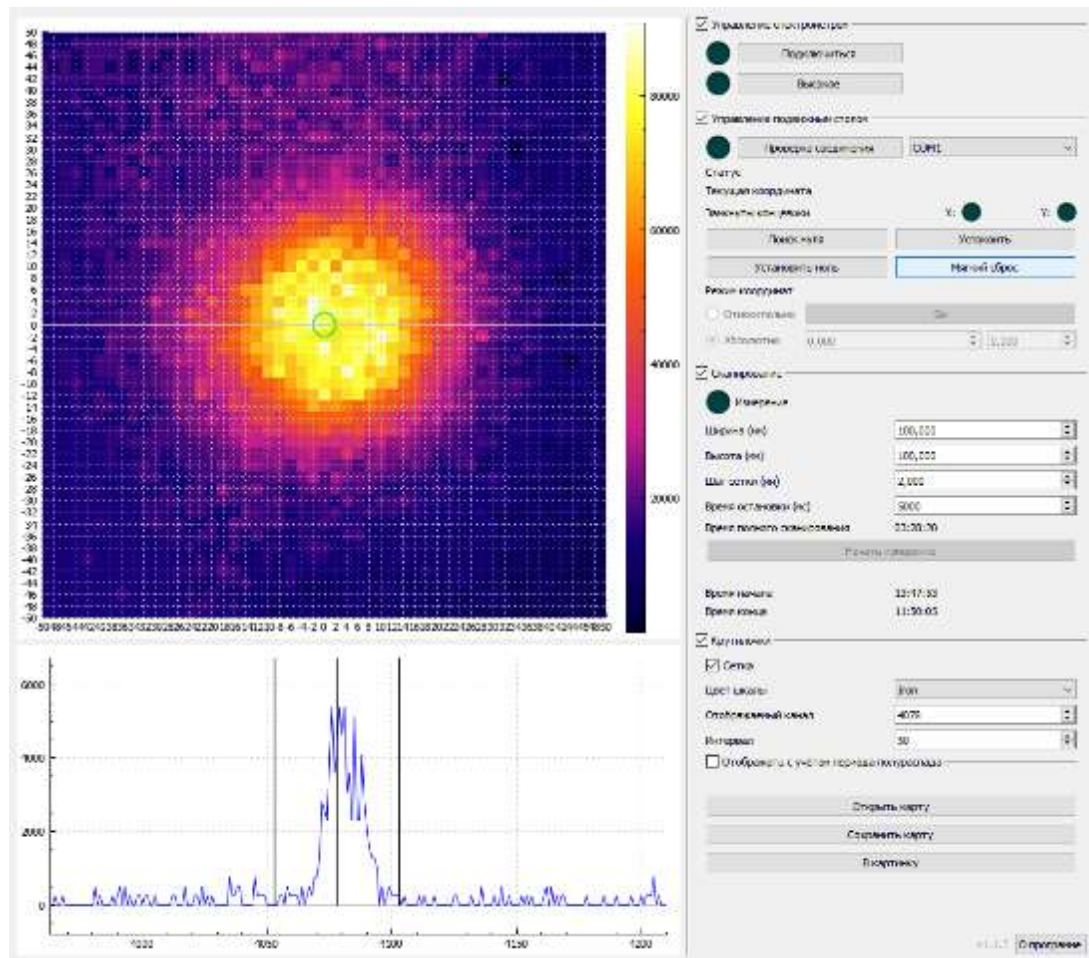


Рисунок 42 – Скриншот программы управления γ -спектрометрического комплекса с результатом измерения пространственного распределения интенсивности излучения γ -квантов энергией 478 кэВ; шаг измерений 2 мм, время измерения одной точки 5 с

Затем литий был смыт водой и двумя методиками установлено, что треть лития осталась в меди. Измерение проводимости воды, которой был смыт литий, указывает на то, что в ней содержится 22 мг лития, в то время как напылили 30 мг. Дозиметр-радиометр ДКС-96 с блоком детектирования БДМГ-96 (ООО "Доза", Россия) регистрировал мощность дозы γ -излучения мишени, обусловленного накоплением радиоактивного изотопа ${}^7\text{Be}$, после смыва лития водой 40 мкЗв/ч, в то время как до смыва – 120 мкЗв/ч. Этот результат указывает на то, что 3 мкм лития проникли внутрь меди.

Проникновение лития в медь подтверждено также следующим образом. После облучения протонами мишень с толщиной слоя лития 30 мкм была снята с установки, и ее активация сразу измерена спектрометром γ -излучения СЕГ-1КП-

ИФТП на основе полупроводникового детектора. В спектре излучения зарегистрированы две яркие линии: с энергией 478 кэВ из-за распада образовавшихся ядер ${}^7\text{Be}$ с периодом полураспада 53 дня и с энергией 511 кэВ из-за активации меди нейтронами (период полураспада атомного ядра ${}^{64}\text{Cu}$ равен 12 ч). После удаления лития водой интенсивность линии 478 кэВ уменьшилась в 12 раз (с 420 до 34 с^{-1}), в то время как интенсивность линии 511 кэВ осталась прежней (41 с^{-1}).

Таким образом, в результате проведения четвертой серии экспериментов установлено, что литий не проникает в медь при напылении, но проникает при облучении протонами до появления блистеров на поверхности меди, вероятнее всего, от нагрева.

2.3 Выводы главы 2

В результате исследования радиационного блистеринга меди с тонким слоем лития установлено следующее.

1. Облучение 2 МэВ протонами мишени, выполненной в виде медного диска, на который нанесен тонкий слой лития, как и следовало ожидать, приводит к появлению блистеров на поверхности меди. Флюенс появления блистеров и их размеры соответствуют параметрам предыдущих исследований образования блистеров на поверхности меди без лития. Блистеры на поверхности меди проявляются сквозь слой лития в виде возвышений. Их появление на поверхности меди не приводит к изменению выхода нейтронов.

2. Дальнейшее облучение мишени протонами приводит к постепенному исчезновению блистеров в области интенсивного облучения. Какой-либо эрозии меди или удаления поверхностного слоя меди не обнаружено, что обусловлено наличием тонкого слоя лития, удерживающего неизбежно возникающие медные чешуйки. Поскольку они никуда не удаляются, они подвергаются дальнейшему облучению протонами, и структура меди из кристаллической переходит в

“аморфную”. Уменьшения выхода нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из-за модификации структуры меди не зарегистрировано.

3. При толщине слоя лития меньше длины пробега протона с начальной энергией до порога генерации нейтронов экспериментально зарегистрирована деградация выхода нейтронов из литиевой мишени. Установлено, что эта деградация обусловлена проникновением лития внутрь меди. Оно начинается при нагреве мишени пучком протонов, в том числе до момента появления блистеров, и улучшает адгезию литиевого слоя к поверхности меди.

4. Водород, доставленный пучком протонов в приповерхностный слой меди, не вступает в химическое соединение с литием, что могло бы приводить к падению выхода нейтронов.

Полученные результаты изменяют сложившееся представление о влиянии блистеринга. Впервые установлено, что радиационный блистеринг на поверхности меди литиевой мишени не приводит к деградации выхода нейтронов, т.е. не делает мишень непригодной к эксплуатации, не ограничивает время ее эксплуатации. Деградация выхода нейтронов возможна из-за диффузии лития в медь и может быть исключена напылением литиевого слоя толщиной, большей длины пробега протонов с начальной энергии до порога генерации нейтронов.

Результаты исследования влияния флюенса протонов на модификацию поверхности меди после появления блистеров доложены и обсуждены на Рабочем совещании по литиевой мишени (Окинава, Япония, 2017) [35], на 9-й Международной школе молодых исследователей в области бор-нейтронозахватной терапии (Киото, Япония, 2017) [36] и опубликованы в научном журнале [28]. Результаты исследования влияния радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из литиевого слоя доложены и обсуждены на научном семинаре ИЯФ СО РАН и опубликованы в научном журнале [29]. Для защиты интеллектуальной собственности на тонкую литиевую мишень, стойкую к радиационному блистерингу, получен патент на изобретение [34].

Полученные знания позволяют сделать предположение о взаимодействии пучка протонов с литиевой мишенью. Как только литиевую мишень облучают пучком протонов, литий начинает диффундировать в медь, улучшая адгезию лития к меди. При достижении определенного флюенса протонов на поверхности меди появляются блистеры в виде возвышений с полостью внутри. Появление блистеров не приводит к перегреву лития и его испарению². Всплывание блистеров сопровождается появлением трещин, через которые водород, доставляемый пучком протонов, выходит наружу, а внутрь блистера поступает литий. Полость блистеров заполняется литием, и формируется промежуточный слой литий-медь. Протоны начинают поглощаться в этом слое, разрушая кристаллическую структуру материала и переводя его в аморфное состояние. Существенного распыления этого слоя нет, поскольку он удерживается слоем лития. Со временем в этом промежуточном слое перестают появляться блистеры. Тонкая литиевая мишень становится мишенью, в которой не образуются блистеры и которая способна эффективно генерировать нейтроны длительное время. Именно на технологию изготовления материала, в котором не образуются блистеры, получен патент на изобретение [34].

Достоверность полученных результатов подтверждает недавно проведенная генерация быстрых нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(d, n)$ с использованием разработанной мишени. С 25 апреля по 25 мая 2022 г. мишень облучали пучком дейтронов в среднем по 8 ч в день, и никакой деградации выхода нейтронов зафиксировано не было.

² При номинальной плотности мощности пучка протонов 300 Вт/см^2 [24] на $h=20 \text{ мкм}$ меди перепад температуры за счет теплопроводности будет $0,15 \text{ }^\circ\text{C}$. При всплывании блистера диаметром $r=500 \text{ мкм}$ толщиной $h=20 \text{ мкм}$ тепло будет идти по большему, чем 20 мкм пути порядка $(r+h)/2=35 \text{ мкм}$, т.е. в $1,75$ раз большему. Сечение же с πr^2 изменится на πrh , т.е. уменьшится в $r/h=2,5$ раз. В итоге температура поверхности блистера возрастает на величину $\Delta T=0,15 \cdot (1,75 \cdot 2,5-1)=0,6 \text{ }^\circ\text{C}$. Такой кратковременный прирост температуры на $0,6 \text{ }^\circ\text{C}$ не приводит к испарению лития.

Глава 3.

Люминесценция поверхности литиевой мишени при облучении протонами

В Главе 3 приведены результаты исследования обнаруженного эффекта люминесценции поверхности литиевой мишени под действием протонного пучка, предложен и описан метод измерения и контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени на основе эффекта люминесценции.

Ускорительный источник эпитепловых нейтронов, предложенный и разработанный для развития бор-нейтронозахватной терапии, помимо основного предназначения также применяют для измерения содержания примесей в образцах керамики, разработанных для ИТЭР [90], для измерения сечения реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ [31], для измерения сечения реакции ${}^7\text{Li}(p,\alpha){}^4\text{He}$, для радиационного тестирования оптических волокон системы лазерной калибровки калориметра CMS для работы Большого адронного коллайдера (ЦЕРН) в режиме высокой светимости [91] и других приложений.

Для длительной стабильной генерации нейтронов требуется разработка диагностических методик, отображающих в режиме реального времени актуальную информацию от разных подсистем источника нейтронов. Для измерения и контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени предложен метод, основанный на эффекте люминесценции, который может быть использован в режиме генерации нейтронов.

3.1 Измерение спектра люминесценции литиевой мишени

Схема экспериментальной установки, включающей в себя ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией I для получения стационарного пучка протонов с

энергией до 2,3 МэВ и током до 10 мА, литиевые мишени *11*, *16* для генерации нейтронов в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ и систему формирования пучка нейтронов *12* для формирования направленного потока эпитепловых нейтронов, представлена на рисунке 43.

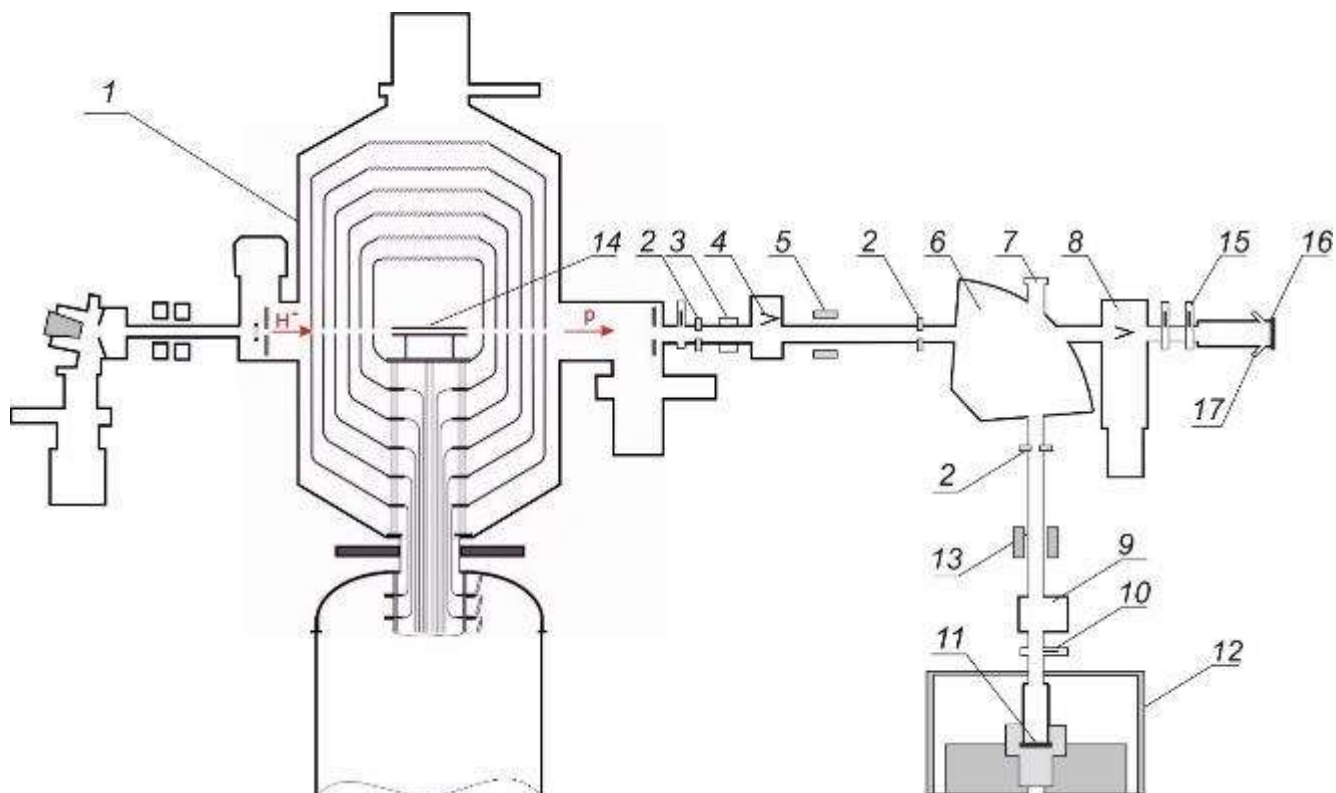


Рисунок 43 – Схема экспериментальной установки: *1* – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, *2* – охлаждаемая диафрагма апертурой 26 мм, *3* – бесконтактный датчик тока Bergoz, *4* – диагностический бак с выдвигаемым цилиндром Фарадея, *5* – корректор, *6* – поворотный магнит, *7* – патрубок поворотного магнита с окном для наблюдения за литиевой мишенью, *8* – диагностический бак с цилиндром Фарадея и вакуумной откачкой, *9* – диагностический бак с вакуумной откачкой, *10* – шибер, *11*, *16* – литиевая мишень, *12* – система формирования пучка нейтронов, *13* – магнитный сканер, *14* – газовая обдирочная мишень, *15* – шибер, *17* – патрубки с окнами для наблюдения

Транспортировку пучка протонов от ускорителя до мишени на расстояние 5 м осуществляют с применением корректора *5* и поворотного магнита *6*. Ток протонов измеряют и контролируют бесконтактным датчиком тока (*3*) НРСТ (Bergoz Instrum., Франция), степень обдирки газовой обдирочной мишени

ускорителя *14* – датчиком потока нейтралов [92], положение пучка – термопарами, вставленными внутрь охлаждаемых диафрагм *2*. Развертку пучка протонов по поверхности мишени осуществляют магнитным сканером *13*. Положение и размер пучка протонов на литиевой мишени контролируют термопарами, вставленными внутрь медного диска мишени, а при энергии протонов ниже порога генерации нейтронов – тепловизором Flir T650sc (США), установленным на патрубке *7* поворотного магнита с окном из фторида бария. Визуальный контроль положения пучка протонов на мишени удобен, но не применим при генерации нейтронов, так как тепловизор не может работать в потоке нейтронов.

Для разработки диагностики визуального контроля положения пучка протонов литиевая мишень (*16* на рисунке 43) размещена в горизонтальной части тракта транспортировки пучка протонов за поворотным магнитом, который в данном случае был выключен. На один из патрубков мишенного узла (*17* на рисунке 43) со стеклом из фторида бария установлена видеокамера Hikvision (Китай), на второй со стеклом из плавленого кварца – затемненный переходник для мультимодового кварцевого оптоволоконного кабеля длиной 1 м с диаметром сердцевины 200 мкм и числовой апертурой 0,22 NA, к которому через оптоволоконный кабель подключен широкодиапазонный (200-1000 нм) спектрометр CCS200 Compact Spectrometer (Thorlabs, США). Для защиты от тормозного излучения ускорителя спектрометр помещен внутрь свинцового коллиматора с внешним диаметром 270 мм, длиной 500 мм, толщиной стенки 50 мм. Размещение оборудования показано на рисунке 44.

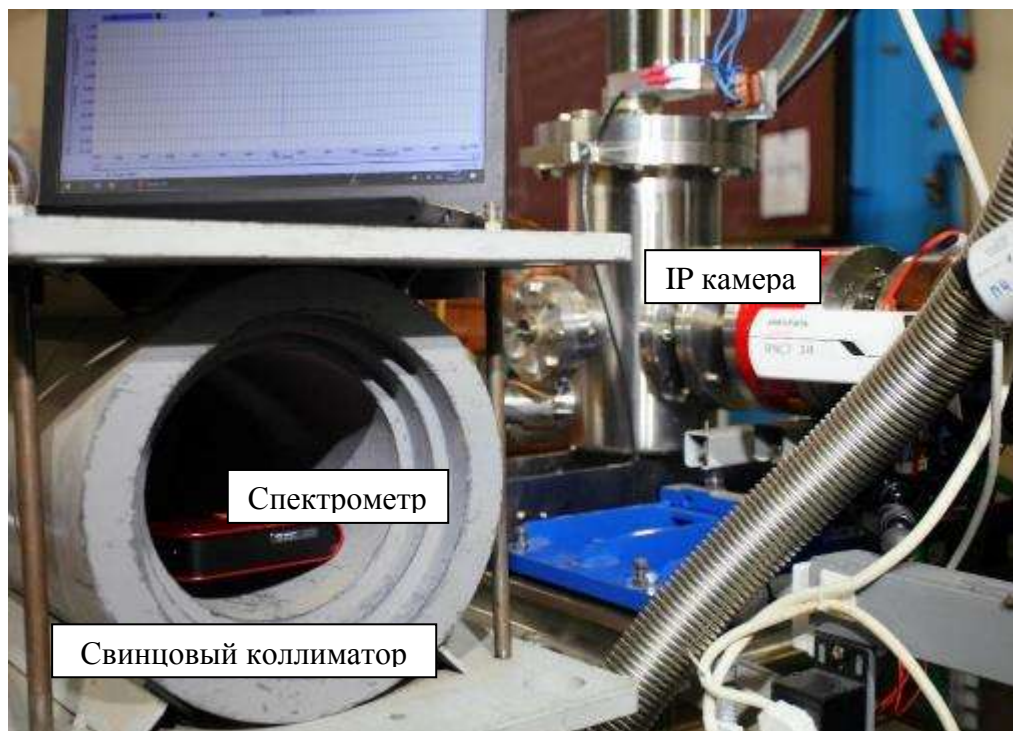


Рисунок 44 – Измерение спектра люминесценции поверхности литиевой мишени

Спектр излучения литиевой мишени, измеренный спектрометром, при ее облучении пучком протонов энергией 2 МэВ представлен на рисунке 45. Линия излучения $610,3 \pm 0,5$ нм соответствует электронному переходу $1s^2 2p \rightarrow 1s^2 3d$ в атоме лития, линия $670,7 \pm 1$ нм – переходу $1s^2 2s \rightarrow 1s^2 2p$ в атоме лития, а линия $656,3 \pm 1$ нм, вероятнее всего, соответствует спектральной линии H_α , наблюдаемой для атома водорода. Также спектр люминесценции измерен в режиме генерации нейтронов, когда спектрометр расположен в соседнем бункере, отделенном бетонной стеной толщиной 1,5 м. Установлено, что спектр люминесценции при генерации нейтронов не отличается от спектра люминесценции без генерации нейтронов.

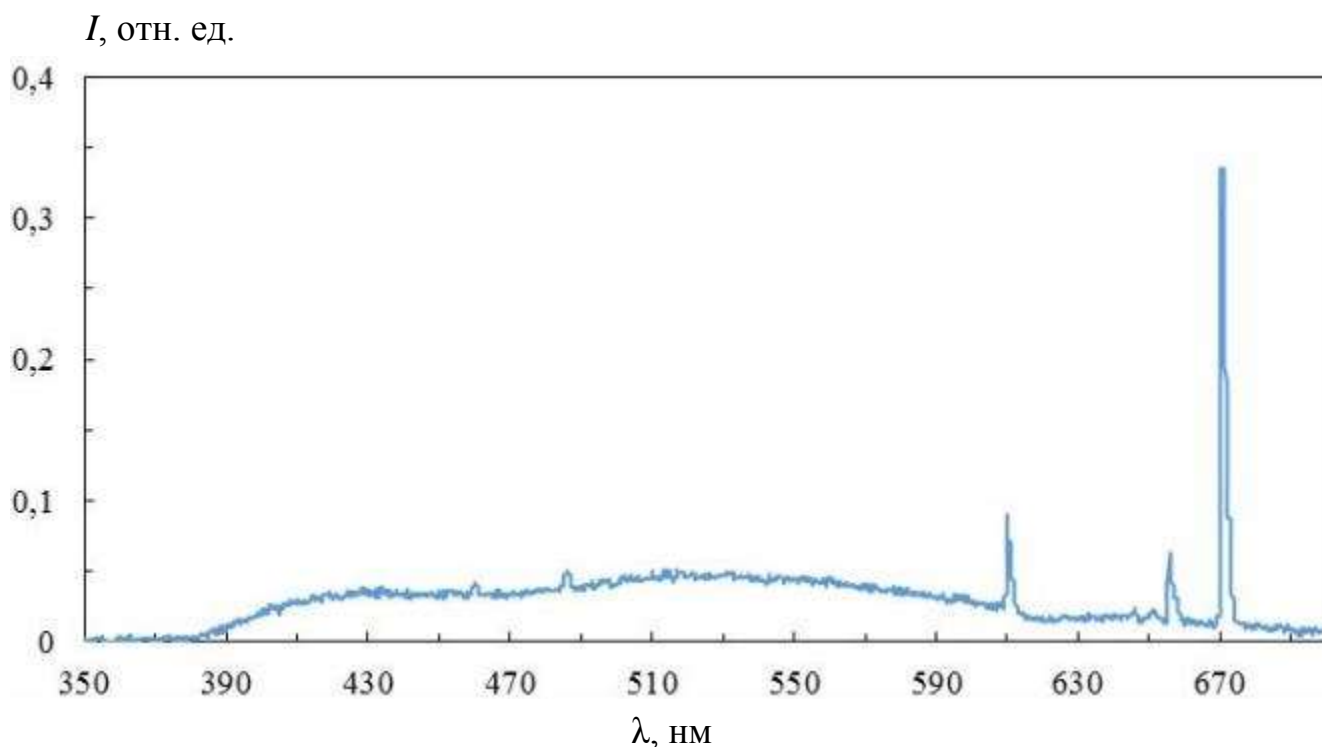


Рисунок 45 – Спектр люминесценции при облучении лития пучком протонов с энергией 2 МэВ

3.2 Диагностика размера и положения пучка протонов по эффекту люминесценции

Люминесценция лития под действием высокоэнергетичных протонов хорошо регистрируется видеокамерой. Так, на рисунке 46 представлены изображения с видеокамеры Hikvision, когда литиевую мишень, присоединенную к тракту через сиффон, облучали пучком протонов диаметром 2 мм и двигали ее актуатором Bohua (Китай). На изображениях отчетливо видно свечение в виде светлого пятна овальной формы. Форма пятна обусловлена тем, что видеокамера смотрит на мишень под углом 45° .

Визуализация пучка протонов на мишени использована при измерении пространственного распределения толщины литиевого слоя по регистрации интенсивности излучения γ -квантов энергией 478 кэВ, испускаемых при неупругом рассеянии протона на атомном ядре лития.



(a)



(б)

Рисунок 46 – Свечение, регистрируемое видеокамерой при облучении литиевой мишени пучком протонов диаметром 2 мм: при попадании пучка в край мишени (а), в центр (б)

На рисунке 47 представлено изображение видеокамеры Hikvision, размещенной на вертикальном патрубке поворотного магнита (7 на рисунке 43) и направленной на литиевую мишень, установленную в вертикальном тракте транспортировки пучка для генерации нейтронов. Светлое пятно в центре обусловлено люминесценцией лития при его облучении протонами. При включении магнитного сканера размер пучка протонов на поверхности литиевой мишени увеличивается, и так же увеличивается размер области свечения.



(a)

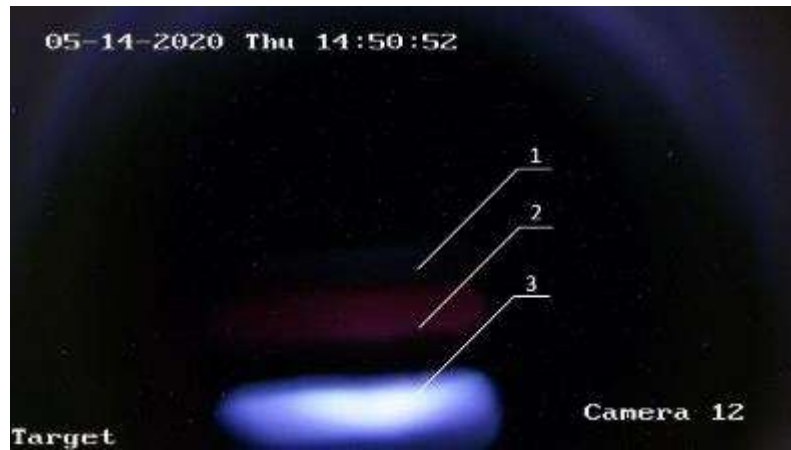


(б)

Рисунок 47 – Свечение, регистрируемое видеокамерой Hikvision, при облучении литиевой мишени пучком протонов: при выключенном (а) и при включенном магнитном сканере (б)

Регистрация люминесценции поверхности литиевой мишени видеокамерой Hikvision позволяет контролировать положение и размер пучка протонов на литиевой мишени, в том числе и при генерации нейтронов из-за достаточной стойкости камеры к потоку нейтронов. Эта диагностика внедрена в эксплуатацию, ее применяют на постоянной основе для контроля положения и размера пучка протонов на нейтроногенерирующей мишени.

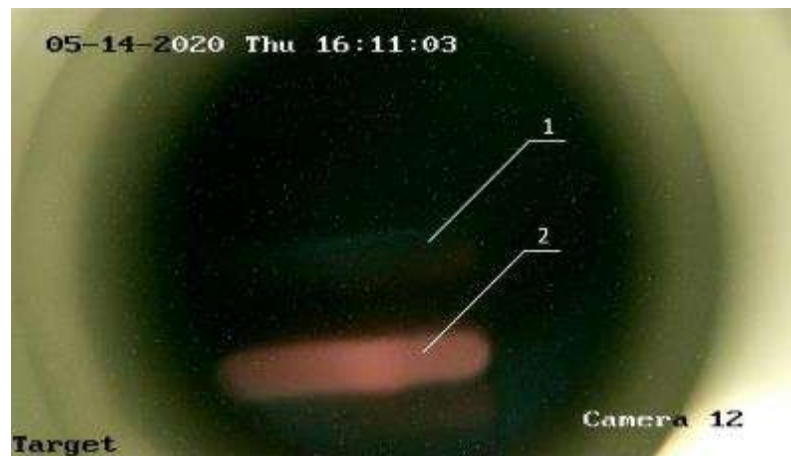
Регистрация люминесценции поверхности литиевой мишени стала полезной при измерении тока пучка ионов аргона, вытекающих из газовой обдирочной мишени и сопутствующих протонам [93]. Для измерения тока ионов аргона использован метод масс-спектрометрии, когда поворотным магнитом так отклоняют заряженные частицы, что протоны не попадают на литиевую мишень, а ионы аргона попадают, и их ток измеряют, поскольку литиевая мишень для проведения исследования электрически изолирована от установки. Проблема в интерпретации полученного результата состояла в том, что измеряемый ток был на уровне точности измерения и, если бы не было видно люминесценции лития под действием пучков заряженных частиц, то не было бы уверенности в том, что измеряемый ток обусловлен именно ионами аргона. На рисунке 48 представлены характерные изображения люминесценции литиевой мишени для ряда ситуаций: (а) поворотный магнит разделяет пучок на 3 компонента: нейтралы, ионы аргона и протоны, (б) при увеличении тока в катушке поворотного магнита на мишень попадают только нейтралы и ионы аргона, а протоны смещаются ниже мишени, (в) увеличенная подача аргона уменьшает поток нейтралов и увеличивает ток ионов аргона, что отражается на яркости свечения.



(a)



(б)



(в)

Рисунок 48 – Свечение, регистрируемое видеокамерой Hikvision при облучении литиевой мишени компонентами пучка заряженных частиц при токе поворотного магнита 14 А (а), 68 А (б) и 68 А и увеличенном в 2 раза газонапуске в обдирочную мишень (в); 1 – свечение, вызванное нейтралами (атомами водорода), 2 – ионами аргона, 3 – протонами

3.3 Выводы главы 3

На ускорительном источнике нейтронов с использованием видеокамеры и спектрометра зарегистрирована люминесценция поверхности литиевой мишени при ее облучении протонами. Регистрируемая линия излучения $610,3 \pm 0,5$ нм соответствует электронному переходу в атоме лития $1s^23d \rightarrow 1s^22p$, линия $670,7 \pm 1$ нм – переходу $1s^22p \rightarrow 1s^22s$. По результатам проведенного исследования разработана и внедрена в эксплуатацию оптическая диагностика оперативного контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени, используемая в режиме генерации нейтронов.

С помощью разработанной диагностики по эффекту люминесценции обеспечено достоверное измерение тока ионов аргона, вытекающего из газовой обдирочной мишени ускорителя и сопутствующего току протонов.

Результаты исследования люминесценции поверхности литиевой нейтроногенерирующей мишени представлены и обсуждены на Азиатском форуме ускорителей и детекторов (Новосибирск, Россия, 2021) [39] и на 19-м Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии (Гранада, Испания, 2021) [40] и опубликованы в трудах конференции [33] и в научном журнале [32].

Глава 4.

Метод *in situ* измерения толщины слоя лития

В главе 4 приведено описание предложенного метода *in situ* измерения толщины слоя лития по регистрации выхода γ -квантов с энергией 478 кэВ в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ и представлены результаты измерения радиального распределения толщины литиевого слоя, термически напыленного в вакууме на медную охлаждаемую подложку. Отмечена возможность применения данного метода для сертификации литиевых мишеней, используемых при проведении бор-нейтронозахватной терапии.

Литиевую мишень для БНЗТ обычно делают трехслойной [50]: тонкий слой лития для генерации нейтронов, тонкий слой радиационно-стойкого металла для поглощения протонов и охлаждаемая медная подложка для отвода тепла. Чтобы соблюсти требования к нейтроногенерирующей мишени, указанные в главе 1, толщину слоя лития выбирают такой, чтобы энергия протонов на выходе из лития была равна или чуть ниже 1,882 МэВ – порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Более толстый слой не увеличит выход нейтронов, но увеличит нежелательный поток 478 кэВ фотонов, излучаемых в реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$. По этой причине актуально измерение толщины литиевого слоя мишени без его повреждения.

Сложность в разработке методики для измерения толщины лития добавляют его высокая химическая активность, что заставляет работать с ним в вакууме или в инертной атмосфере, и его низкая твердость, что не позволяет использовать механические измерители. Ранее при отработке термического напыления лития на медную подложку использовалась методика измерения толщины литиевого слоя по измерению проводимости воды, в которую опускали тонкие медные свидетели, находящиеся при напылении в хорошем тепловом контакте с подложкой [65].

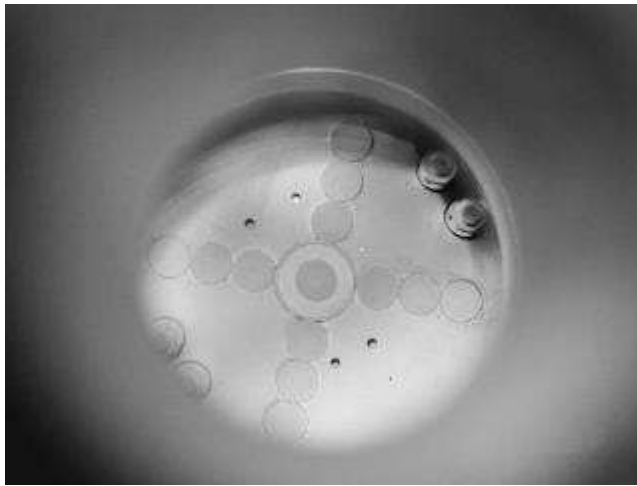
Сейчас для определения средней толщины слоя лития на мишени перед напылением взвешивают литий, как описано в параграфе 1.3, после напыления убеждаются, что весь литий напылился на мишень, или определяют толщину лития после экспериментов по проводимости воды, которой смывают литий с мишени.

Цель работы состоит в разработке метода измерения пространственного распределения толщины литиевого слоя, не приводящего к повреждению мишени.

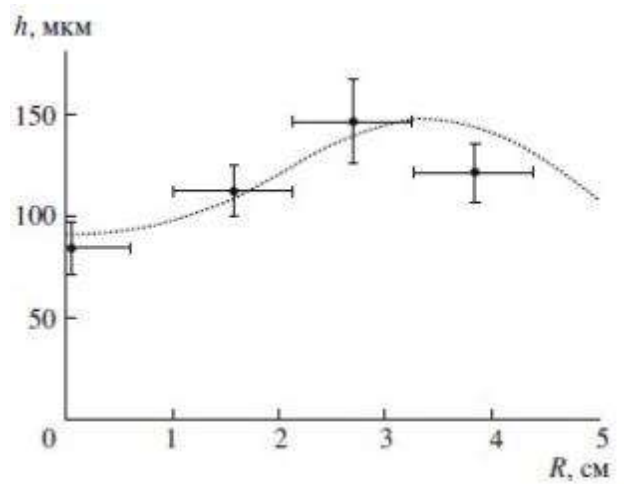
4.1 Обзор методов измерения толщины слоя лития

Измерение радиального распределения толщины литиевого слоя не является тривиальной задачей. Это прежде всего связано с высокой химической активностью лития, который мгновенно взаимодействует с азотом и кислородом при контакте с воздушной средой.

В работе [65] предложена и реализована методика, суть которой заключается в измерении проводимости дистиллированной воды, в которой растворяют тонкие пластинки – “свидетели”, изготовленные из того же материала, что и мишень. Проводимость водного раствора зависит от концентрации растворенного лития. Преимуществом данного метода является независимость образующегося водного раствора от того, является литий чистым или находится в составе какого-либо соединения. На рисунке 49 (а) приведена фотография мишени с медными “свидетелями” после окончания процедуры напыления. Свидетели изготовлены в виде медных дисков толщиной 0,5 мм, площадью 1 см² и прикреплены к мишени с помощью индий-галлиевой пасты, обеспечивающей надежный тепловой контакт. На рисунке 49 (б) представлены результаты измерения радиальной толщины литиевого слоя на поверхности мишени.



(а)



(б)

Рисунок 49 – Измерение толщины слоя лития по проводимости: фотография мишени с установленными “свидетелями” (а), радиальное распределение литиевого слоя: точки – измеренные значения, штриховая кривая – расчетные (б)

Для практического применения данного метода построена зависимость концентрации лития в дистиллированной воде n от проводимости получаемого раствора ρ (рисунок 50). Метод определения количества лития, растворенного в дистиллированной воде, применен при исследовании проникновения лития в медь при облучении мишени протонным пучком [29]. Количество лития, проникшего в медь, определено вычитанием массы лития, восстановленной по проводимости дистиллированной воды, которой после облучения литий был смыт с мишени, из известной массы лития, заложенной при напылении.

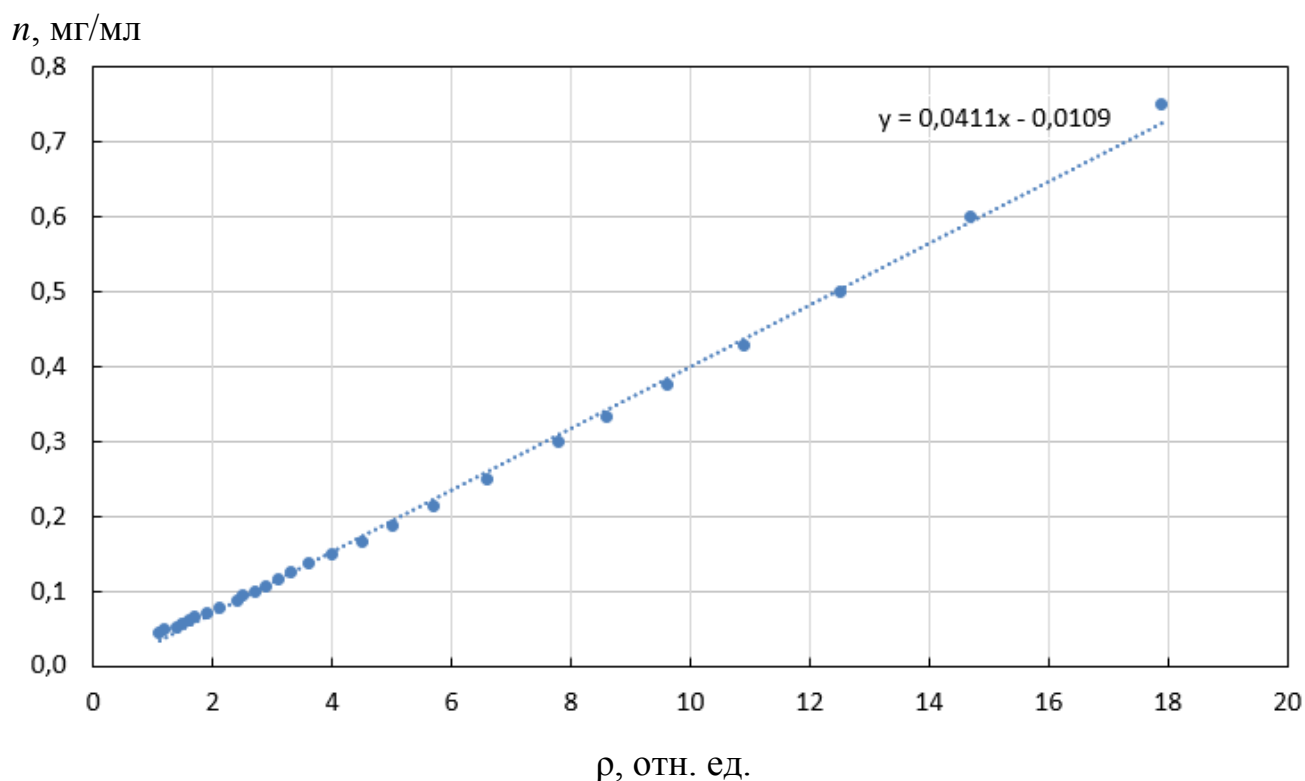


Рисунок 50 – Зависимость концентрации лития в растворе n от проводимости раствора ρ

Несмотря на привлекательные возможности метода измерения количества лития по проводимости воды, следует иметь в виду, что у этого метода есть ограничения. Очевидно, что определение количества лития на мишени таким способом невосвратно разрушает литиевый слой. Также на корректность этого метода влияет, является литий чистым или находится в составе соединения. Несмотря на то, что проводимость воды не зависит от состава литиевых образцов [65], следует иметь в виду, что выдержка литиевых образцов на воздухе не превышала 28 ч. В случае недолгого пребывания на воздухе проводимость растворенного лития действительно меняется незначительно, но при более долгом контакте с воздухом образуемые соединения не позволяют растворить литий полностью, в связи с чем затрудняется движение ионов лития и электропроводность раствора падает (рисунок 51).

ρ , отн. ед.

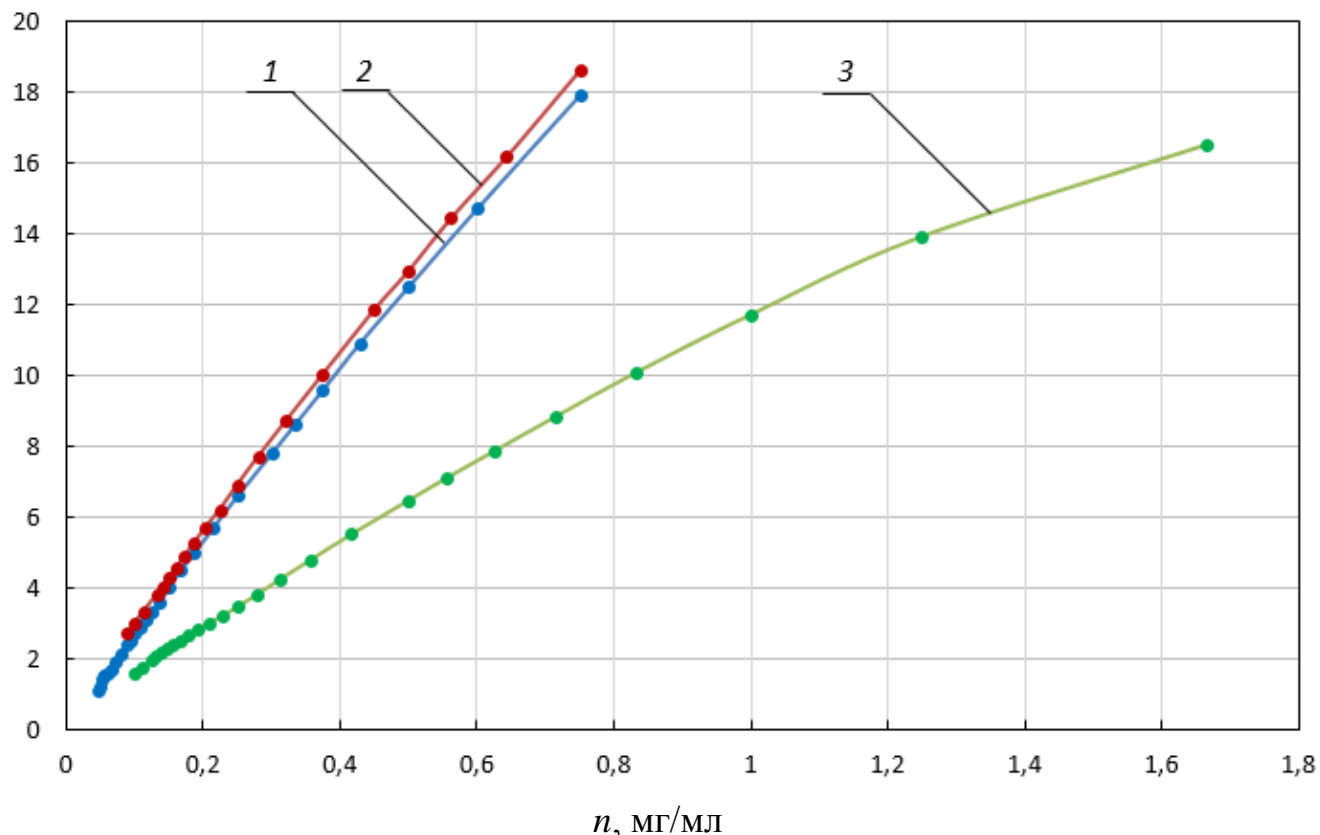


Рисунок 51 – Зависимость проводимости раствора ρ от концентрации лития n , оставленного на воздухе: 1 – на 0 мин, 2 – 6 дней, 3 – 21 день

Известен способ определения толщины покрытий на подложке при помощи микроанализатора растрового электронного микроскопа, при котором измеряется интенсивность спектральной линии характеристического рентгеновского излучения покрытия как меры ее толщины [71]. Такой способ не позволяет измерять покрытия толщиной большей, чем глубина проникновения диагностических электронов в покрытие. Более того, литий нельзя обнаружить таким образом, так как он не обладает характеристическим рентгеновским излучением.

Известно, что определение толщины с помощью проникающего излучения (нейтронов, γ -квантов) производят путем расчетов по формуле [72]

$$I = I_0 e^{-\mu l}, \quad (2)$$

где I_0 , I – потоки излучения, падающего на объект и прошедшего через объект без взаимодействия соответственно; μ – коэффициент ослабления, характеризующий взаимодействие излучения с веществом; l – путь, пройденный излучением в материале. При измерениях сплошных деталей l совпадает с их толщиной (при условии, что излучение падает по нормали к поверхности детали), а при наличии полостей в детали l равно суммарной толщине стенок, через которые проходит излучение.

4.2 Описание метода измерения толщины слоя лития по выходу γ -квантов

Предпосылкой к разработке нового метода измерения толщины слоя лития стало измерение выхода γ -квантов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени при энергии протонов от 0,7 до 1,85 МэВ [31]. Результаты измерения представлены на рисунке 52. Измерения проведены с шагом по энергии 25 кэВ. Стабильность энергии составляла от 0,1 до 0,2 %, в среднем 0,14 %. Относительная точность измерения выхода γ -квантов не превышала 1 %. Абсолютный выход γ -квантов измерен с точностью, лучшей чем 15 %. На рисунке 52 также представлены все данные о выходе γ -квантов из толстой литиевой мишени, измеренные другими авторами в этом диапазоне энергий протонов [74-76].

Суть предлагаемого метода измерения толщины слоя лития состоит в облучении мишени протонами и в измерении γ -спектрометром скорости счета γ -квантов энергией 478 кэВ, испускаемых при неупругом рассеянии протона на атомном ядре лития. При измерении применяют две литиевые мишени: исследуемую и толстую. Толстой называют мишень, в которой протоны затормозились в литии до энергии ниже 478 кэВ – порога реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$. Тонкой называют мишень, в которой протоны затормозились в литии до энергии выше 478 кэВ.

$Y, 10^7 \text{ 1/мкКл}$

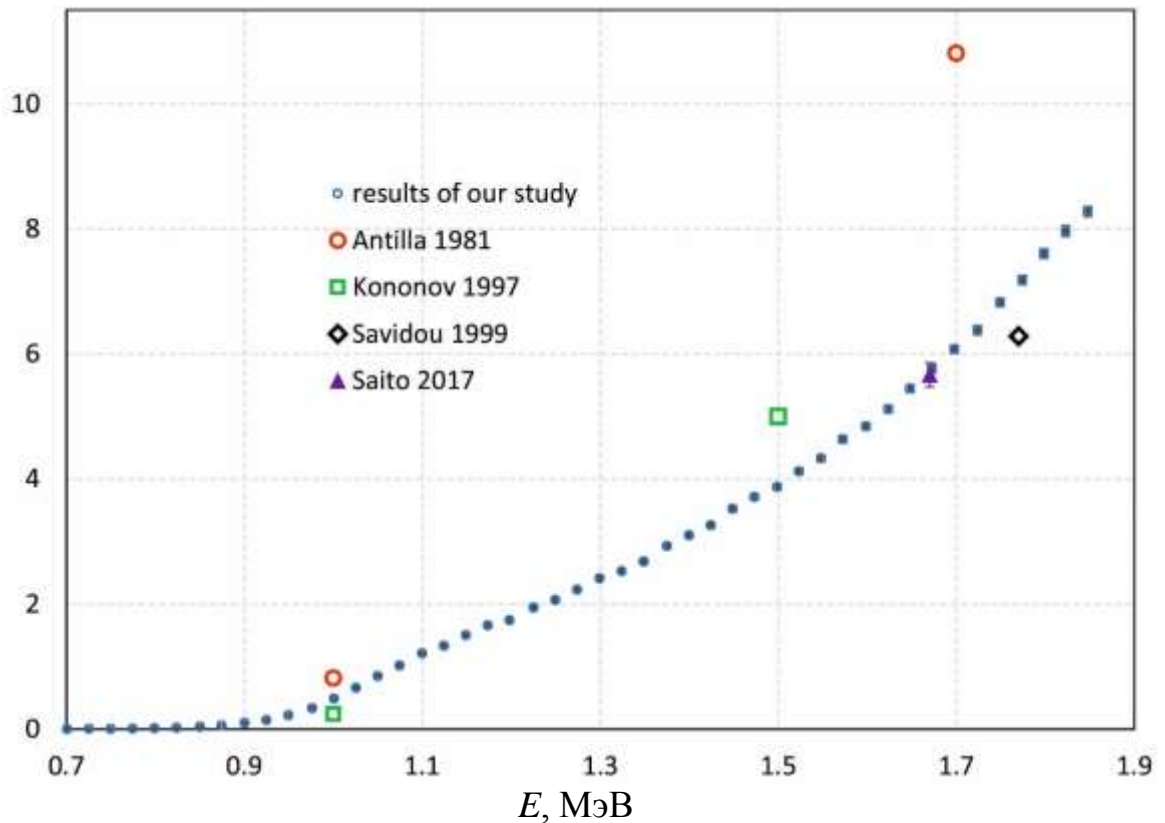


Рисунок 52 – Измеренный выход γ -квантов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$. Для сравнения приведены данные измерений [74-76]

Если исследуемая мишень не будет толстой, то выход 478 кэВ γ -квантов из нее будет меньше, чем из толстой. Измерив отношение скорости счета 478 кэВ γ -квантов из исследуемой и толстой мишени A , можно определить толщину лития h , поскольку скорость потери энергии S протоном в литии известна; она зависит от его энергии E (кэВ) следующим образом [67]:

$$S = \frac{S_{\text{low}} \cdot S_{\text{high}}}{S_{\text{low}} + S_{\text{high}}} \text{ эВ}/(10^{15} \text{ атомов}/\text{см}^2), \quad (3)$$

где $S_{\text{low}} = 1,6 E^{0,45}$, $S_{\text{high}} = \frac{725,6}{E} \ln\left(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578 E\right)$. На рисунке 53 представлена зависимость величины потери энергии протона в литии от энергии.

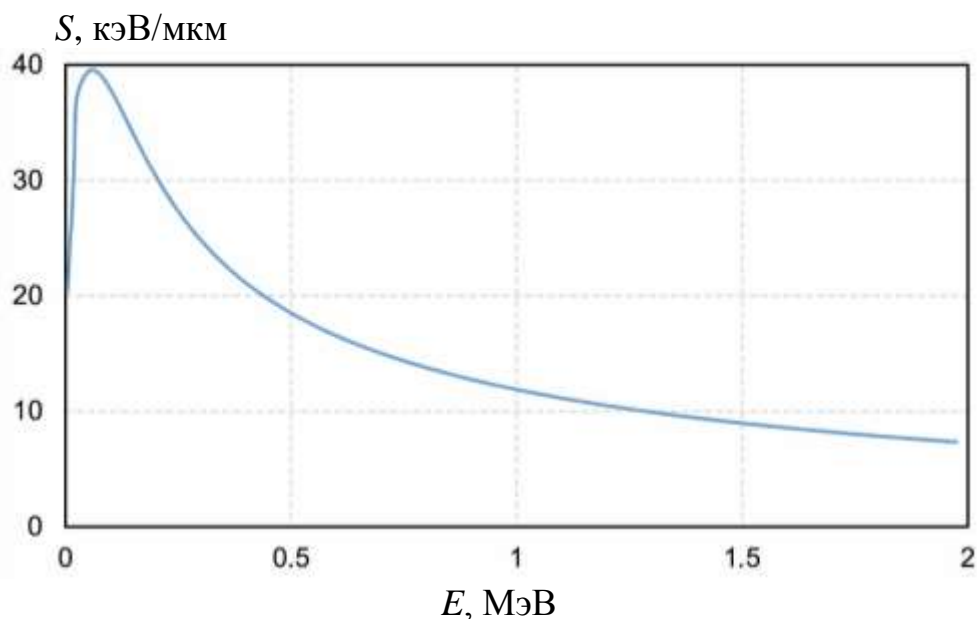


Рисунок 53 – Зависимость скорости потери энергии протона S на литии от энергии протона E

Оптимальным представляется проведение измерений при энергии, немного ниже порога реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$, например 1,85 МэВ, поскольку не будет нейтронов, способных повредить спектрометр и инициировать дополнительный поток γ -квантов, и выход 478 кэВ γ -квантов будет максимальным. Для удобства, используя данные, представленные на рисунке 53, построим график зависимости толщины лития h от отношения интенсивностей излучения 478 кэВ γ -квантов из исследуемой и толстой мишени A , измеренного при энергии протонов 1,85 МэВ. Для каждой энергии E_i найдем $A_i = \frac{Y_i}{Y_{1.85}}$, где Y_i – выход γ -квантов при энергии протонов E_i , $Y_{1.85}$ – выход γ -квантов при энергии протонов 1,85 МэВ. Затем, используя приведенную выше формулу скорости потери энергии протоном в литии, находят толщину h_i , на которой протон теряет энергию с 1,85 МэВ до E_i .

На рисунке 54 видно, что в диапазоне A от 0 до 0,9 экспериментально измеренные значения $h(A)$ хорошо аппроксимируются выражением, удобным для практического применения:

$$h \text{ (мкм)} = 45,698 A^2 + 56,281 A.$$

На рисунке 54 видно, что при энергии протонов 1,85 МэВ предложенная методика позволяет проводить измерения толщины слоя лития вплоть до 100 мкм. Измерение большей толщины требует увеличения энергии протонов и, как следствие, использования γ -спектрометра, стойкого к потоку нейтронов.

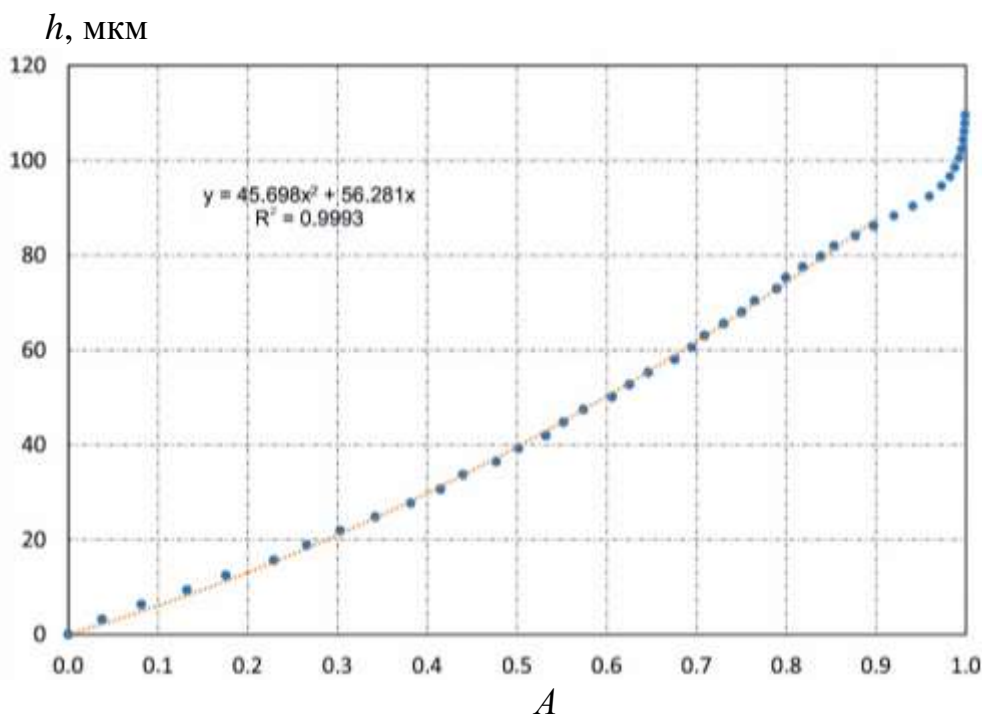


Рисунок 54 – График определения толщины слоя лития h от измеренного отношения интенсивности излучения 478 кэВ γ -квантов из исследуемой и толстой мишени A при энергии протонов 1,85 МэВ. Пунктир – линия тренда, проведенная через экспериментальные точки в диапазоне A от 0 до 0,9. Приведено также уравнение линии тренда и величина достоверности аппроксимации R^2

4.3 Реализация метода измерения толщины слоя лития

Практическая реализация предложенного метода измерения толщины слоя лития осуществлена на ускорительном источнике эпитепловых нейтронов ИЯФ СО РАН. Схема экспериментальной установки для проведения данного исследования представлена на рисунке 55. В ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией 1 получают пучок протонов с энергией 1,85 МэВ, часть которого через охлаждаемый коллиматор 3 с диаметром отверстия 2 мм направляют на литиевую мишень 7 и измеряют интенсивность γ -излучения.

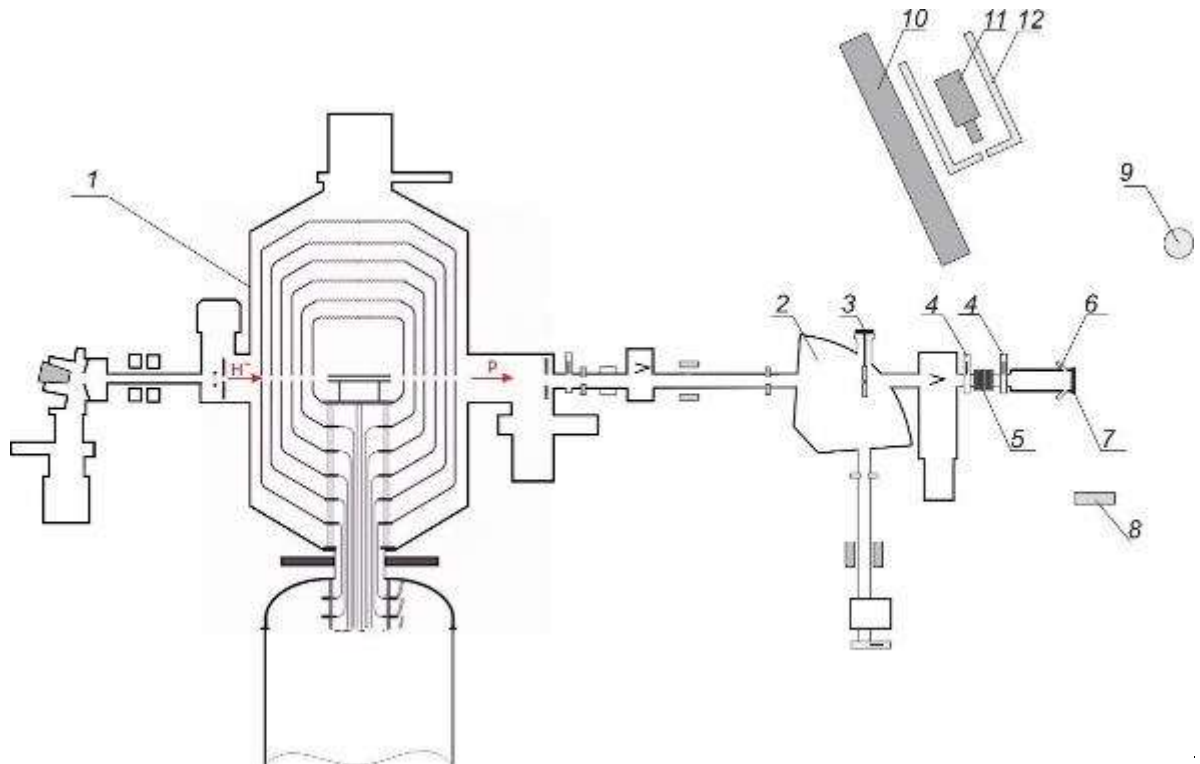


Рисунок 55 – Схема экспериментальной установки: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – поворотный магнит, 3 – охлаждаемый коллиматор с апертурой 2 мм, 4 – шибер, 5 – сильфон, 6 – окно для наблюдения, 7 – литиевая мишень, 8 – дозиметр γ -излучения, 9 – дозиметр нейтронного излучения, 10 – бетонная стенка, 11 – спектрометр γ -излучения, 12 – свинцовый коллиматор

Мишенный узел с литиевой мишенью подсоединен к установке через сильфон 5, что позволяет сдвигать ее в горизонтальной плоскости относительно оси установки электрическим линейным актуатором Bohua (Китай) на расстояние до 5 см в обе стороны. Точность установки положения актуатора составляет 0,5 мм. Смещение мишени обеспечивает ее сканирование 2 мм протонным пучком вдоль диаметра. Положение протонного пучка на мишени контролируют с помощью люминесценции поверхности литиевой мишени [33].

Ток протонов, облучающих мишень, измеряют омическим делителем напряжения, подсоединенным к мишенному узлу, электрически изолированному от установки.

Интенсивность γ -излучения измеряют спектрометром 11 СЕГ-1КП-ИФТП (АО «ИФТП», Россия) на основе полупроводникового детектора из особо чистого

германия. Спектрометр помещен внутрь свинцового коллиматора 12 с внешним диаметром 27 см, длиной 50 см, толщиной стенки 5 см. Спектрометр вместе с коллиматором защищают от излучения ускорителя стенкой 10 толщиной 23 см, выстроенной из бетонных блоков. Заметим, что размещение бетонной стенки, коллиматора и спектрометра показано на Рисунке 55 схематически; в реальности они расположены в горизонтальной плоскости за вакуумной камерой с литиевой мишенью.

Спектрометр γ -излучения откалиброван по полной чувствительности радионуклидным источником фотонного излучения закрытого типа Cs-137 с активностью $1,6 \cdot 10^8$ Бк (достоверность 10 %) по линии излучения 661,7 кэВ. При проведении калибровки радионуклидный источник был помещен на поверхность медного диска мишени в его центре – максимально близко к месту излучения γ -квантов из лития. Относительная чувствительность спектрометра откалибрована следующими эталонными источниками фотонного излучения из набора ОСГИ-ТР (ЗАО «Ритверц», Россия): Na-22, Mn-54, Co-60, Ba-133, Cs-137, Eu-152 и Bi-207.

В полученной конфигурации поверхность литиевой мишени сканируют пучком протонов диаметром 2 мм, который визуальнo контролируют видеокамерой Hikvision DS-2CD4026 с объективом 11-40 mm F1.4 (Hikvision Digital Technology Co., Ltd, Китай), установленной на окно б со стеклом из плавленого кварца. Видеокамера регистрирует нетепловое свечение мишени, обусловленное люминесценцией поверхности литиевой мишени под действием высокоэнергетичных протонов. Примеры изображений, полученных при перемещении мишени, приведены на рисунке 56. На изображениях отчетливо видно свечение в виде светлого пятна овальной формы. Форма пятна обусловлена тем, что видеокамера направлена на мишень под углом 45° .

4.4 Результаты измерений и их обсуждение

Измерения проведены для трех мишеней, на которые напылен визуально однородный слой лития диаметром 90 мм со средней толщиной 200, 68 и 7,4 мкм, как описано в главе 1 параграф 1.3. Средняя толщина литиевого слоя определена из массы лития, закладываемого при напылении, с учетом 2 % потерь, ранее определенных экспериментально.

Сразу после напыления литиевого слоя мишенный узел переносят с сохранением остаточного вакуума около 0,5 Па со стенда напыления на экспериментальную установку и облучают протонным пучком с энергией 1,85 МэВ и средним током, проходящим через коллиматор, 11-14 мкА.

Протоны с начальной энергией 1,85 МэВ тормозятся в литии до 478 кэВ, порога реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$, на длине 126 мкм (согласно приведенной выше формуле зависимости потери энергии протоном в литии [67]). Поэтому одну из мишеней, со средней толщиной лития 200 мкм, считаем толстой, остальные две – исследуемыми.

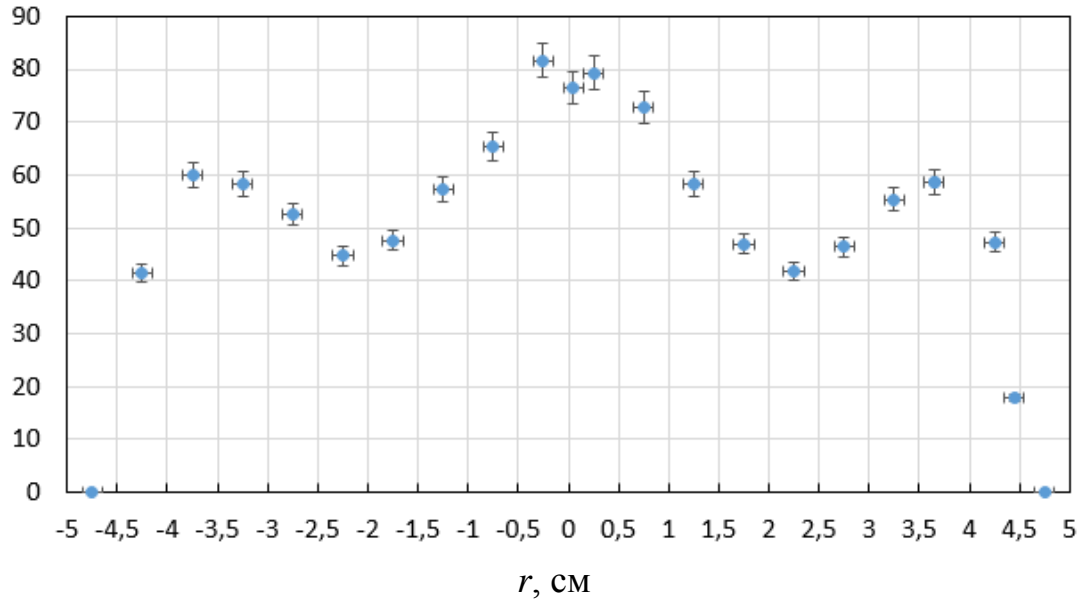
В процессе облучения мишень с помощью актуатора перемещают в горизонтальном направлении с шагом 0,5 см в диапазоне ± 5 см относительно оси ускорителя.

После каждого перемещения мишени γ -спектрометром измеряют скорость счета γ -квантов с энергией 478 кэВ, генерируемых в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$. Набор статистики проводят в течение 2 мин; ошибка измерения скорости счета не превышает 0,5 %. Полученные значения нормируют на средний ток протонов. Далее вычисляют A – отношение нормированной скорости счета γ -квантов, испускаемых из исследуемой мишени, к нормированной скорости счета γ -квантов, испускаемых из толстой мишени. Затем по формуле $h(\text{мкм}) = 45,698 A^2 + 56,281 A$ определяют толщину лития.

На рисунке 56 представлены результаты измерения радиального распределения толщины лития исследуемых мишеней. Точность измерения по оси

абсцисс определяется размером протонного пучка на мишени, в данном случае 2 мм, по оси ординат – преимущественно стабильностью тока протонного пучка, в данном случае от 3 до 5 %.

h , МКМ (а)



h , МКМ (б)

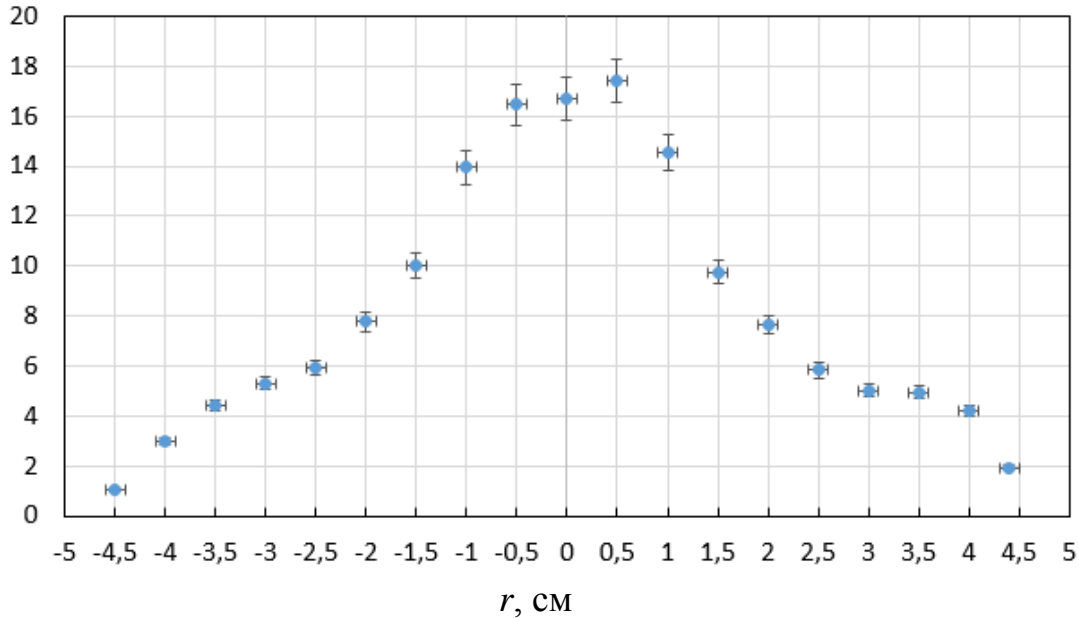


Рисунок 56 – Радиальное распределение толщины лития: мишени со средней толщиной слоя лития 68 мкм (а), 7,4 мкм (б)

Для мишени со средней толщиной слоя лития 7,4 мкм оказалось возможным измерить его относительную толщину по выходу нейтронов. Для этого энергию протонов увеличивают до 2,05 МэВ и дозиметром (9 на рисунке 55) измеряют мощность дозы нейтронного излучения. При энергии 2,05 МэВ протоны теряют в литии энергию со скоростью 0,14 кэВ/мкм и затормозятся на 50 кэВ на толщине 7 мкм. В этом диапазоне энергий протонов сечение реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ с хорошей точностью постоянно (от 295 мб при 2,00 МэВ до 309 мб при 2,05 МэВ), поэтому выход нейтронов пропорционален толщине литиевого слоя. На рисунке 57 вместе с результатом измерения толщины лития по выходу γ -квантов для сравнения представлен результат измерения по выходу нейтронов. Видно, что результаты измерений хорошо согласуются.

h , мкм

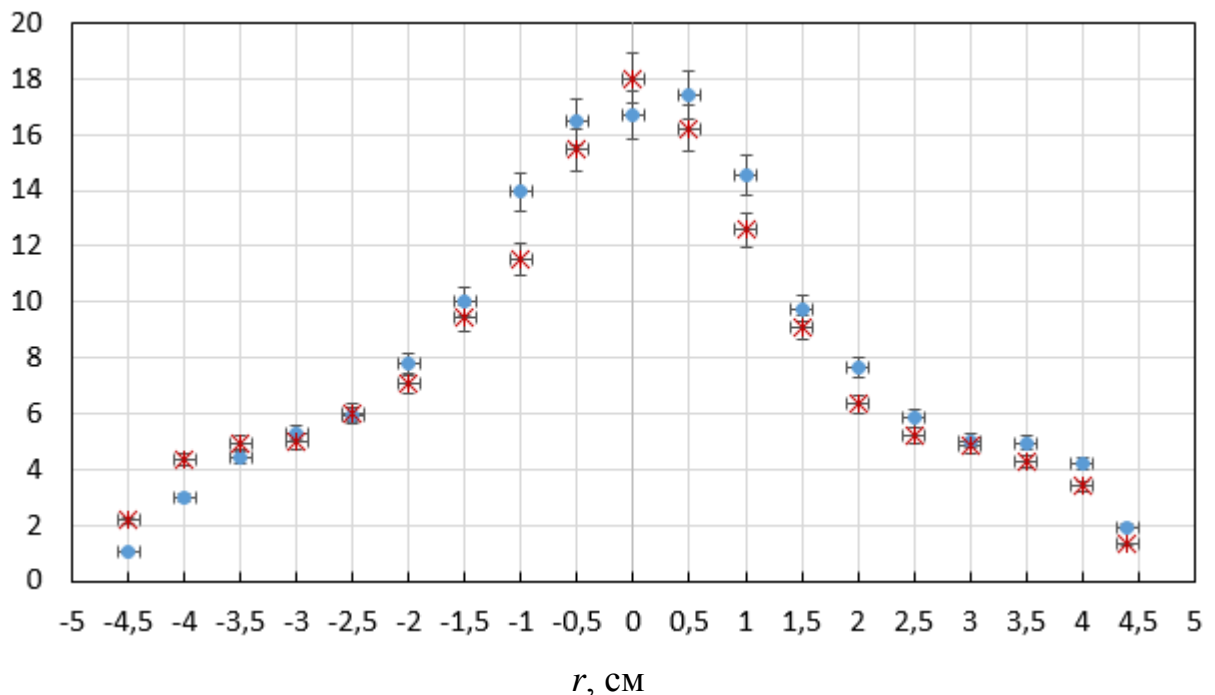


Рисунок 57 – Радиальное распределение толщины слоя лития: \circ – измеренное по выходу γ -квантов, \times – измеренное по выходу нейтронов

4.5 Оптимизация напыления лития

По результатам измерения толщины литиевого слоя решено изменить геометрию нагреваемого стакана в стенде напыления лития так, чтобы напыляемый слой лития был более равномерным. Для этого в программе Comsol Multiphysics 5.4 произведено численное моделирование процесса напыления с различной геометрией нагреваемого стакана. Моделирование выполнено в предположении бесстолкновительного движения атомов лития и диффузного рассеяния на стенках нагреваемого стакана и закрывающем экране. Результаты моделирования для различных конфигураций представлены на рисунке 58: вверху – схематически изображен нагреватель с различной высотой и различными вариантами исполнения закрывающего экрана, внизу – результат моделирования для соответствующей конфигурации в виде распределения атомов лития на медной подложке. В результате моделирования определена оптимальная геометрия напыления: внутренний диаметр титанового стакана 84 мм, высота увеличена с 15 до 70 мм, закрывающий экран в форме диска диаметром 36 мм с отверстием 0,3 мм в центре, расположенный на высоте 3 мм от поверхности стакана (см. рисунок 12 (б)). Титановый стакан оснащен медным кожухом с внутренним диаметром 94 мм, который играет роль терморазвязки.

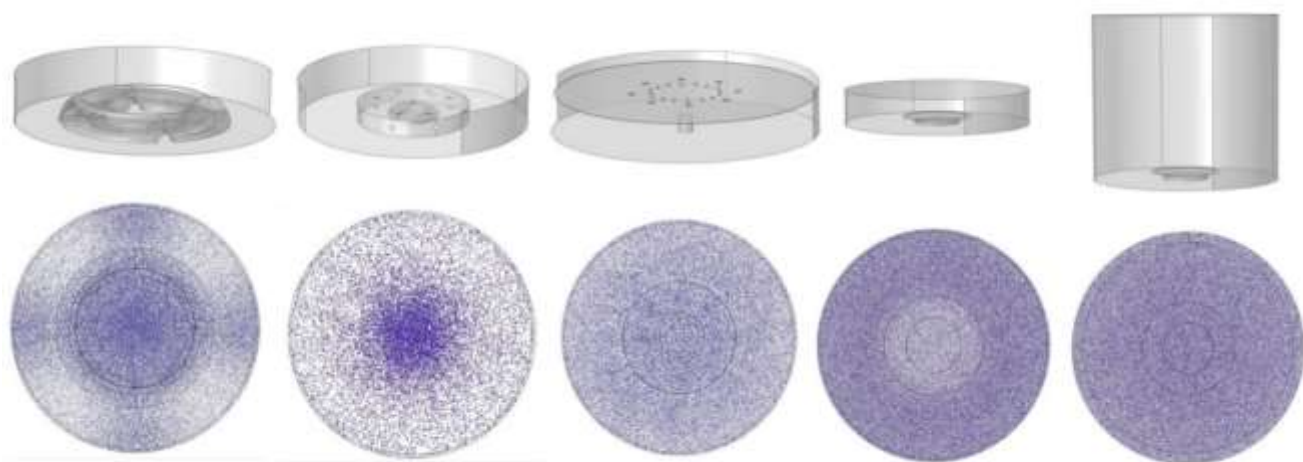


Рисунок 58 – Моделирование различных вариантов напыления лития

На рисунке 59 представлены фотографии стакана нагревателя вместе с закрывающим экраном до и после модернизации. После модернизации стенда напыления вновь измерено распределение толщины литиевого слоя. Чтобы исключить неравномерность медной подложки, перед напылением лития ее поверхность специально отполирована до зеркала с помощью алмазной полировки. Результат измерения представлен на Рисунке 60. Отличие распределения от куполообразной формы объясняется наличием водяных каналов охлаждения в алюминиевой крышке, присоединенной к медной подложке в мишенном узле (рисунок 61). γ -кванты, рожденные в реакции ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$, теряют меньше энергии в водных каналах, чем в алюминии до того, как попадут в γ -спектрометр. Поэтому в форме радиального распределения толщины лития есть характерные возвышения в центре и по бокам, там, где в мишенном узле проходят водные каналы охлаждения.

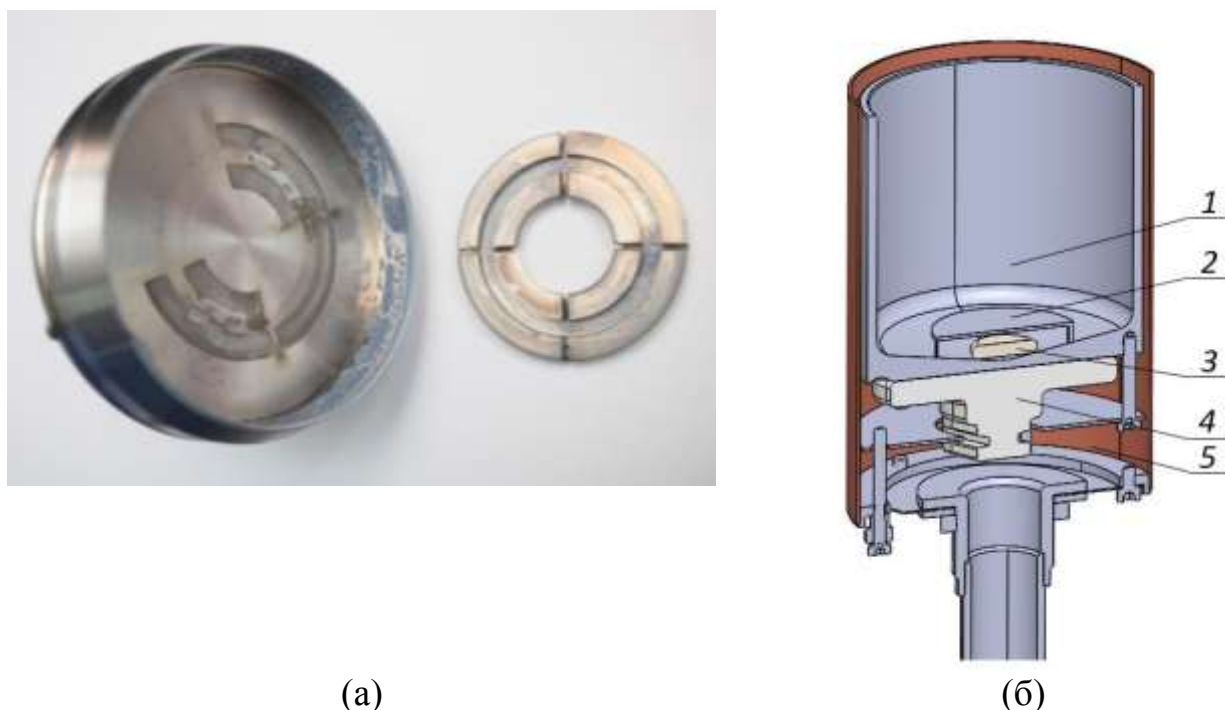


Рисунок 59 – Исходный стакан нагревателя вместе с закрывающим экраном (а), стакан нагревателя 1 после модернизации: закрывающий экран 2, литий 3, нагреватель QFE 4, медный кожух 5 (б)

h , мкм

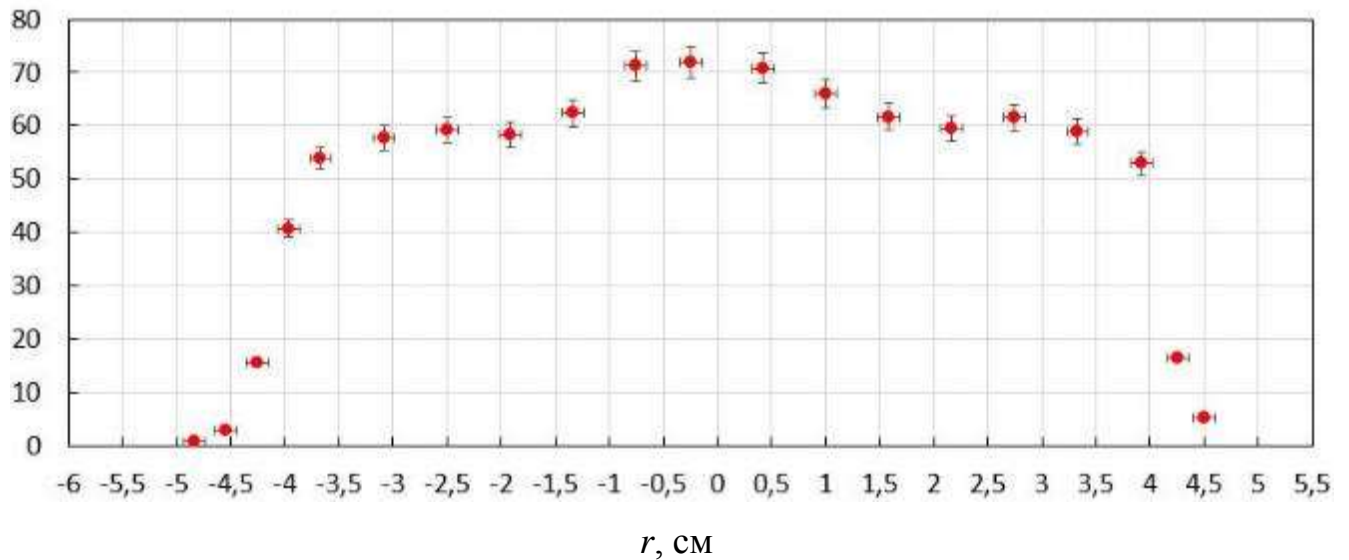


Рисунок 60 – Радиальное распределение толщины слоя лития, измеренное по выходу γ -квантов

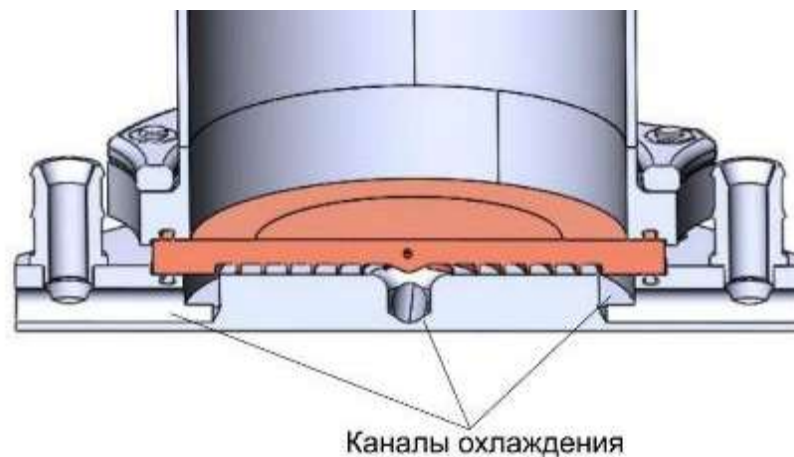
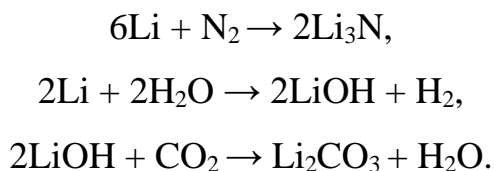


Рисунок 61 – Мишенный узел в разрезе с указанием каналов водяного охлаждения

Для подтверждения достоверности полученных результатов предложена и реализована методика измерения толщины литиевого слоя с помощью конфокального сканирующего профилометра. Предполагалось, что результаты измерения таким способом могут оказаться некорректными, так как для измерения мишень с литиевым слоем нужно было помещать на воздух. Известно, что литий – химически активный металл [97, 98]. На воздухе он вступает во взаимодействие с азотом с образованием нитрида лития. В отличие от чистого лития, имеющего серебристо-белый цвет, нитрид лития – соединение зеленовато-черного цвета. Во

влажной среде литий вступает во взаимодействие с водой, образуя гидроксид, а затем по реакции замещения гидроксид, реагируя с углекислым газом, превращается в карбонат лития:



На рисунке 62 показано, как изменяется внешний вид литиевого слоя при нахождении мишени на воздухе. Сразу после напыления литий равномерно распределен [37] по поверхности мишени и имеет серебристый оттенок (рисунок 62 (а)), однако после нескольких дней пребывания на воздухе, особенно в помещениях с повышенной влажностью, весь литий прореагирует до карбоната лития. Карбонат лития выглядит как хрупкая белая корка на подложке мишени (рисунок 62 (б)). Очевидно, что высота карбонатного слоя отличается от высоты исходного лития.



(а)

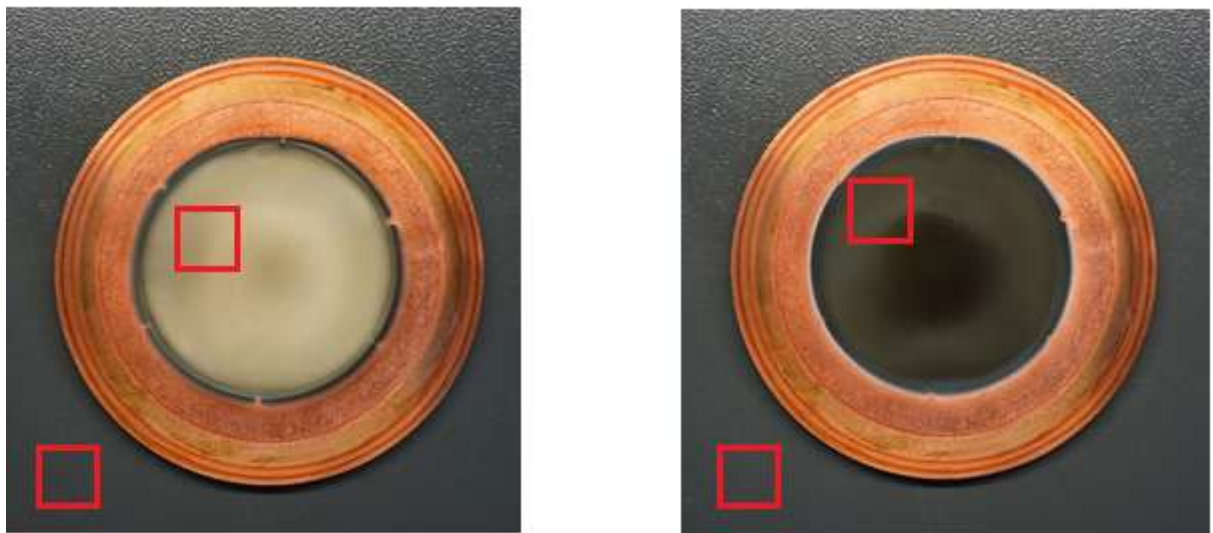


(б)

Рисунок 62 – Мишень в вакууме со свежим литиевым слоем (а) и мишень, находящаяся на воздухе в течение нескольких дней (б)

Взаимодействие литиевого слоя на поверхности мишени с атмосферным воздухом исследовано визуально. Для этого мишень была оставлена на воздухе, и

в течение 2 ч с интервалом в 1 мин мишень фотографировали с неизменным освещением и фиксированными настройками фотокамеры. Температура и влажность воздуха контролировались датчиком температуры и влажности DS100 (Fine Offset Electronics Co., Ltd, Китай). Температура во время эксперимента находилась в диапазоне 24 ± 1 °С, влажность – 26 ± 3 %. Изменение яркости фотографий в области лития отслеживали относительно области с постоянной яркостью. Выбранные области обозначены квадратами на рисунке 63.



(a)

(б)

Рисунок 63 – Фотографии литиевой мишени: мишень со свеженапыленным литием (а), мишень после 5 мин на воздухе (б). Квадратами обозначены области наблюдения за изменением яркости изображений

После обработки фотографий построили временную зависимость изменения яркости изображений (рисунок 64). Для определения яркости использовали цветовую модель HSV. Литий заметно темнеет в первые 10 мин пребывания на воздухе и больше не меняется в течение оставшегося времени.

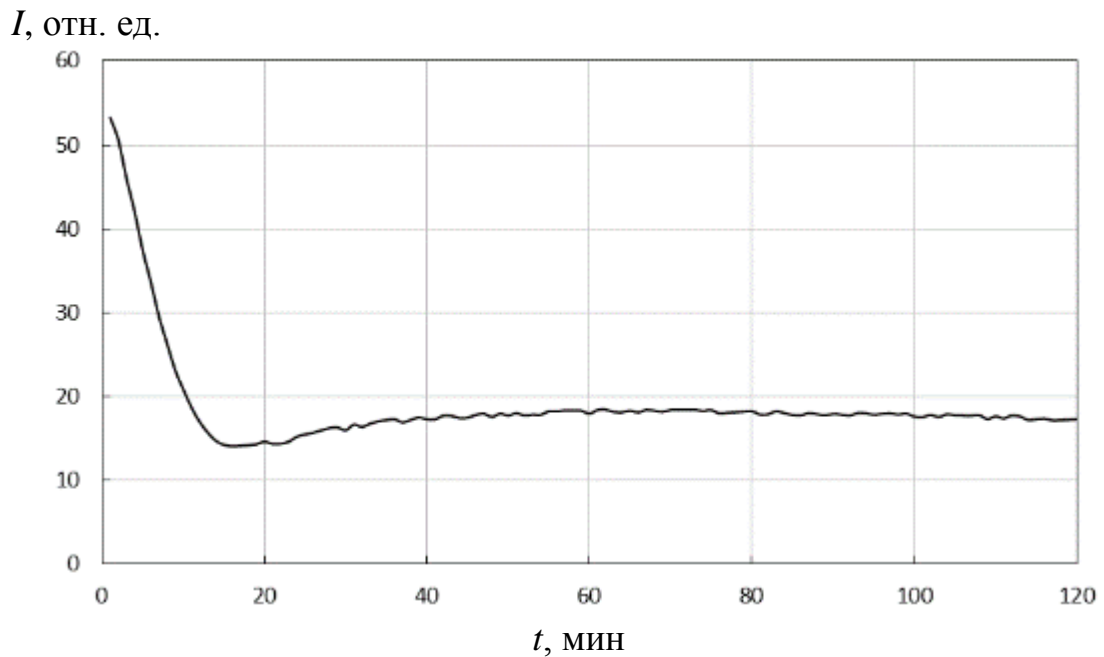


Рисунок 64 – График зависимости яркости изображений с литием от времени

Исследована динамика толщины слоя лития при взаимодействии с воздушной средой. После напыления лития мишенный узел отсоединили от стенда напыления и с сохранением вакуума принесли на сканирующий профилометр с конфокальными хроматическими сенсорами Института автоматизации и электротехники СО РАН (Новосибирск, Россия). Медную подложку с литиевым слоем отсоединили от мишенного узла и поместили на систему перемещения непосредственно перед измерением. Для измерений использована измерительная головка CL1-MG210 с диапазоном измерения расстояния до поверхности 150 мкм и точностью 20 нм. Для отслеживания изменения толщины слоя лития сканировали с латеральным разрешением 5 мкм область с литием 2×200 мм и неменяющуюся область без лития 2×5 мм. Первый час на воздухе сканирование проводили с шагом 3 мин, следующие 9 ч сканирование проводили каждый час. Затем для каждого измерения была определена средняя толщина области с литием и средняя толщина области без лития. После вычитания значения средней толщины области без лития из значения средней толщины области с литием построили график зависимости изменения толщины слоя лития от времени экспозиции на воздухе, представленный на Рисунке 65. Видно, что в первый час нахождения на воздухе

толщина литиевого слоя меняется незначительно, на 0,6 %, через 5 ч толщина слоя лития перестает расти, но отличие от изначальной толщины не превышает 4 %.

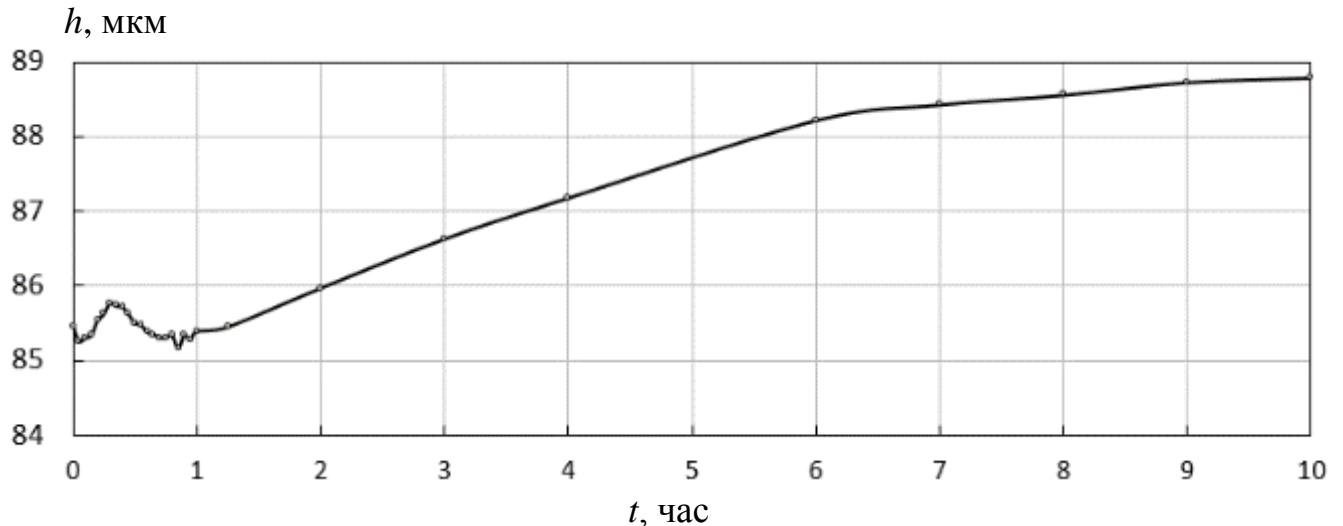


Рисунок 65 – Изменение толщины слоя лития в зависимости от экспозиции на воздухе

Незначительное изменение толщины слоя при нахождении на воздухе позволило измерить радиальное распределение лития на сканирующем конфокальном профилометре. Для этого после напыления лития мишенный узел был снят со стенда напыления с сохранением вакуума 0,5 Па. Мишень вскрыли на воздух непосредственно перед размещением на системе перемещения образца и сканированием. Для измерений на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами использовали измерительную головку CL1-MG210 с диапазоном измерения расстояния до поверхности 150 мкм и точностью 20 нм. Распределение толщины лития 3 на рисунке 66 получено в результате вычитания двух сканирований: одно сканирование медной подложки с литиевым слоем 1, второе – медной подложки в том же положении после смывания лития 2.

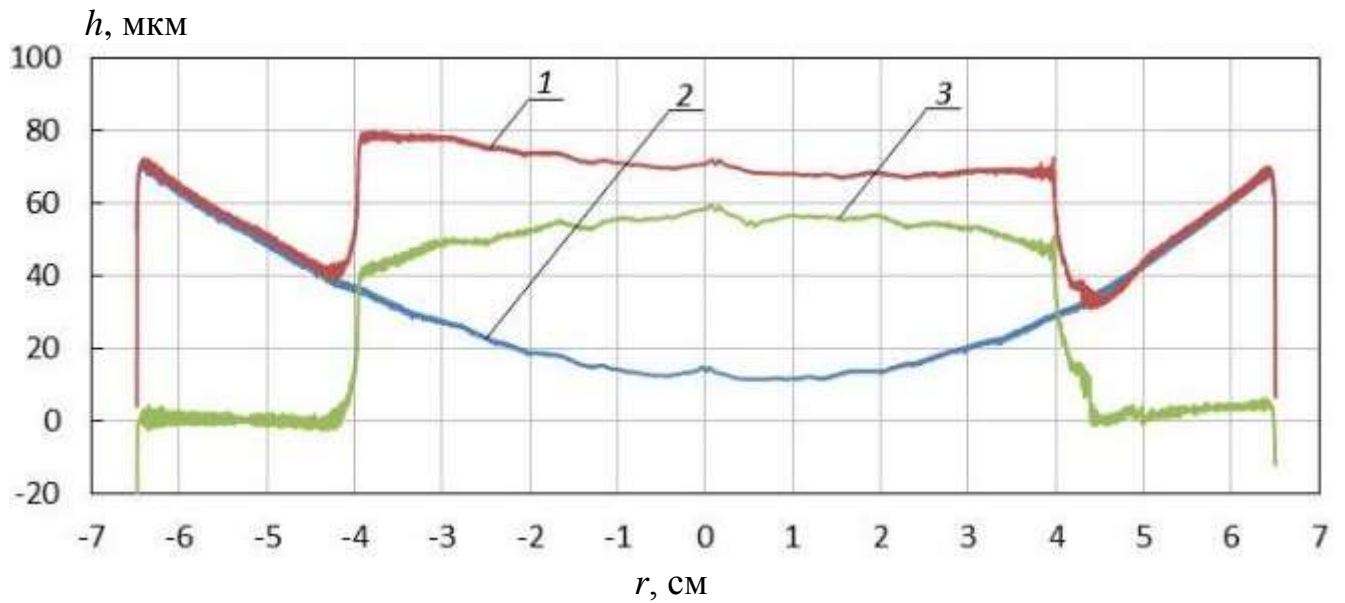


Рисунок 66 – Радиальное распределение толщины слоя лития, измеренное на конфокальном сканирующем профилометре: 1 – медная подложка с литиевым слоем, 2 – медная подложка без литиевого слоя, 3 – результат вычитания (1–2)

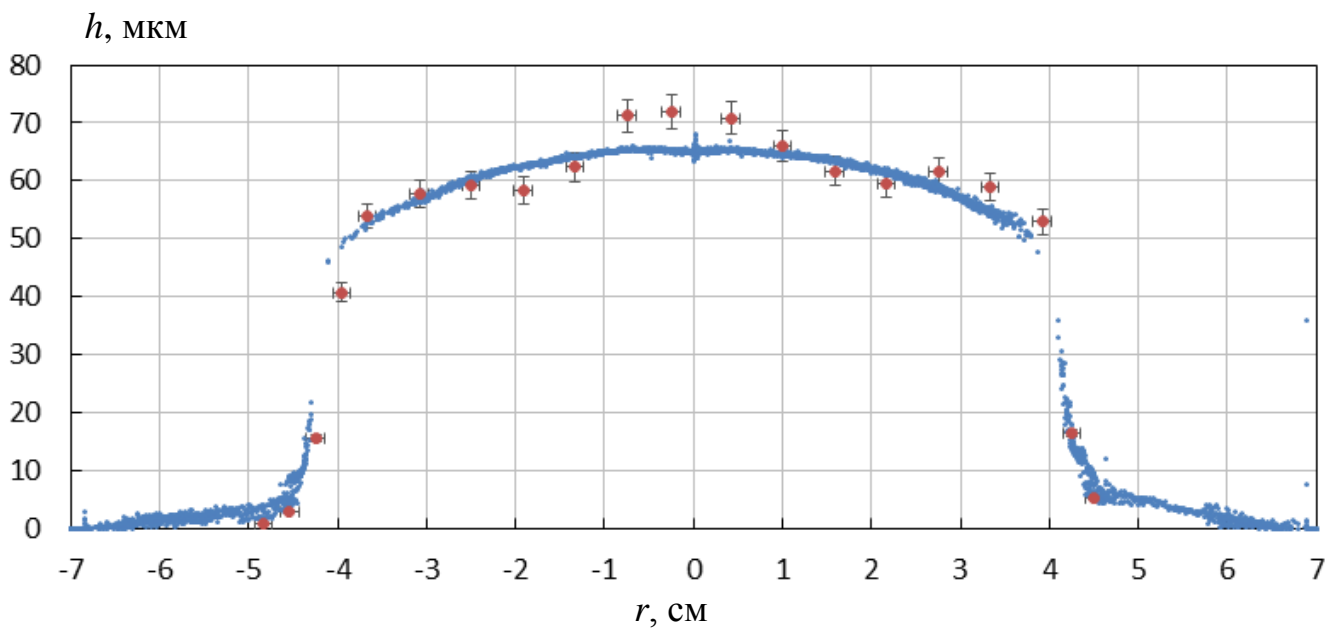


Рисунок 67 – Радиальное распределение толщины слоя лития: синим – измеренное на конфокальном сканирующем профилометре, красным – измеренное по выходу γ -квантов

На рисунке 67 представлены результаты измерения радиального распределения лития, измеренные по выходу γ -квантов, вместе с измеренными на конфокальном сканирующем профилометре. Видно, что результаты измерения хорошо согласуются.

4.6 Выводы главы 4

Сравнение интенсивностей излучения γ -квантов с энергией 478 кэВ из исследуемого литиевого слоя и из толстого при их облучении протонами с энергией 1,8 МэВ позволяет *in situ* измерять толщину слоя лития до 100 мкм без его повреждения. Метод неразрушающего контроля толщины литиевого слоя может быть применен для сертификации литиевых мишеней, используемых при проведении бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей.

Результаты разработки метода измерения толщины слоя лития и проведенных исследований представлены и обсуждены на 19-м Международном конгрессе по нейтрон-захватной терапии (Гранада, Испания, 2021) [41] и опубликованы в научном журнале [30].

Заключение

Бор-нейтронозахватная терапия – перспективная методика лечения злокачественных опухолей, заключающаяся в уничтожении раковых клеток путем избирательного накопления в них ^{10}B с последующим облучением эпитепловыми нейтронами. Общеизвестно, что наилучшее качество терапевтического пучка нейтронов достигается с применением ускорителя с относительно низкой энергией протонов и бóльшим током и литиевой мишени.

Данная работа посвящена исследованию литиевой мишени для генерации нейтронов, а именно, изучению радиационного блистеринга меди с тонким слоем лития, изучению люминесценции поверхности литиевой мишени под действием протонного пучка и разработке диагностика на ее основе, разработке и внедрению метода *in situ* измерения толщины лития.

Основные результаты диссертационной работы следующие:

1. Предложен, разработан и использован стенд термического напыления литиевого слоя на медную подложку нейтроногенерирующей мишени.
2. С применением нейтронного дозиметра и детектора нейтронов с литийсодержащим сцинтиллятором исследовано влияние радиационного блистеринга меди при имплантации протонов на выход нейтронов в пороговой реакции $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ из литиевого слоя, нанесенного на медь.
3. С применением длиннофокусного микроскопа и видеокамеры изучена динамика появления и исчезновения блистеров на поверхности тонкой литиевой мишени.
4. После длительного облучения пучком протонов тонкой литиевой мишени изъятые частицы лития исследованы на монокристалльном дифрактометре, поверхность медной подложки мишени исследована на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами, микроструктура подложки мишени исследована на растровом электронном микроскопе.

5. Измерением проводимости воды, которой смывают слой лития с мишени, и измерением активации мишени в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ изучено проникновение лития внутрь медной подложки мишени.

6. Обнаружена, исследована и использована люминесценция поверхности литиевой мишени при ее облучении протонами.

7. Предложен, реализован и использован новый метод *in situ* измерения толщины слоя лития без его повреждения.

8. В результате использования разработанных диагностических средств и методов оптимизировано напыление лития для получения однородного по толщине слоя лития.

9. В результате проведенного исследования разработана тонкая литиевая мишень, стойкая к радиационному блистерингу и однородная по толщине, которая оптимальна для генерации нейтронов с целью проведения бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей.

Разработанная в ИЯФ СО РАН тонкая литиевая мишень используется в ускорительном источнике нейтронов для центра БНЗТ в г. Сямынь (провинция Фуцзянь, Китай) и будет использоваться в ускорительном источнике нейтронов для Национального медицинского исследовательского центра онкологии им. Н.Н. Блохина (Москва, Россия). В связи с внедрением БНЗТ в клиническую практику актуальными становятся дальнейшие исследования литиевой мишени, а именно измерение выхода нейтронов в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из литиевой мишени, исследование динамики возможного накопления примесей при длительном облучении мишени, изучение диффузии лития в медь и возможного перехода меди из кристаллического состояния в аморфное при длительном облучении протонами.

Автор выражает огромную благодарность научному руководителю Таскаеву Сергею Юрьевичу за возможность написания данной работы, проявленное участие, помощь и наставничество как при проведении исследований, так и при подготовке

текста диссертации, а также Таскаевой Елене Львовне за ценные замечания по тексту диссертации.

Спасибо коллегам из Института ядерной физики СО РАН: Баянову Борису Федоровичу, Быкову Тимофею Александровичу, Касатову Дмитрию Александровичу, Колесникову Ярославу Александровичу, Кошкареву Алексею Михайловичу, Макарову Александру Николаевичу, Остринову Георгию Михайловичу, Понедельченко Алексею Викторовичу, Пономареву Павлу Дмитриевичу, Савинову Сергею Сергеевичу, Щудло Ивану Михайловичу, Эдель Василию Ивановичу. Благодарю Голошевского Николая Владимировича и Руктуева Алексея Александровича за помощь в проведении исследований. Огромная благодарность всем преподавателям Новосибирского Государственного Университета и кафедры физики плазмы Института ядерной физики СО РАН.

Список литературы

1. WHO report on cancer: setting priorities, investing wisely and providing care for all. Geneva, World Health Organization. – 2020. – 160 p.
2. Neutron Capture Therapy: Principles and Applications / W. Sauerwein, A. Wittig, R. Moss, Y. Nakagawa (editors). – Berlin : Springer, 2012. – 553 p. – ISBN 978-3-642-31333-2. – Текст : непосредственный.
3. Таскаев, С. Ю. Бор-нейтронозахватная терапия : [монография] / С. Ю. Таскаев, В. В. Каньгин. - Новосибирск : Издательство СО РАН, 2016. – 216 с. – ISBN 978-5-7692-1500-1. – Текст : непосредственный.
4. Locher, G. Biological Effects and Therapeutic Possibilities of Neutrons / G. Locher. – Текст : непосредственный // Am. J. Roentgenol Radium Ther. – 1936. – Vol. 36, nr 1. – P. 1-13.
5. Moss, R. Critical review, with an optimistic outlook, on Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) / R. Moss. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2014. – Vol. 88. – P. 2–11. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.109>. – Дата публикации: 4.12.2013.
6. The requirements and development of neutron beams for neutron capture therapy of brain cancer / R. Moss, O. Aizawa, D. Beynon [et al.]. – Текст : электронный // J. Neurooncol. – 1997. – Vol. 33. – P. 27-40. – URL: <https://doi.org/10.1023/A:1005704911264>. – Дата обращения: 22.06.2022.
7. Nigg D. Neutron sources and applications in radiotherapy – a brief history and current trends. In: Nakagawa, Y., Kobayashi, T., Takamatsu, Fukuda H. (Eds.), Advances in Neutron Capture Therapy 2006 / D. Nigg. – Текст : непосредственный // Proceedings of the 12th International Congress on Neutron Capture Therapy (Takamatsu, Kagawa, Japan, 9–13 October 2006). – Takamatsu, Kagawa, 2006.
8. Harling, O., Riley, K. Fission reactor-based irradiation facilities for neutron capture therapy. In: Neutron Capture Therapy: Principles and Applications / W. Sauerwein, A.

- Wittig, R. Moss, Y. Nakagawa (editors). – Berlin : Springer, 2012. – P. 19-39. – ISBN 978-3-642-31333-2. – Текст : непосредственный.
9. Accelerator-based BNCT for patients with recurrent glioblastoma: a multicenter phase II study / S. Kawabata, M. Suzuki, K. Hirose [et al.]. – Текст : электронный // *Neuro-Oncology Advances*. – 2021. – Vol. 3, nr 1. – P. 1-9. – URL: <https://doi.org/10.1093/noajnl/vdab067>. – Дата публикации: 20.05.2021.
10. Boron neutron capture therapy using cyclotron-based epithermal neutron source and borofalan (^{10}B) for recurrent or locally advanced head and neck cancer (JHN002): An open-label phase II trial / K. Hirose, A. Konno, J. Hiratsuka [et al.]. Текст : электронный // *Radiotherapy and Oncology*. – 2021. – Vol. 155. – P. 182-187. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.radonc.2020.11.001>. – Дата публикации: 10.11.2020.
11. Blue, T. Accelerator-based epithermal neutron sources for boron neutron capture therapy of brain tumors / T. Blue, J. Yanch. – Текст : электронный // *J. Neuro-Oncol.* – 2003. – Vol. 62, nr 1–2. – P. 19-31. – URL: <https://doi.org/10.1007/BF02699931>. – Дата обращения: 22.06.2022.
12. Шерцер, Б. Распыление твердых тел ионной бомбардировкой. Глава 7. Развитие рельефа на поверхности вследствие имплантации ионов газа. Под ред. Р. Бериша / Б. Шерцер. – Москва : Мир, 1986. – 336 с. – Текст : непосредственный.
13. Гусева, М. И. Радиационный блистеринг / М.И. Гусева, Ю.В. Мартыненко. – Текст : электронный // *Успехи физ. наук*. – 1981. – Т. 135, вып. 4. – С. 671-691. – URL: <https://doi.org/10.3367/UFNr.0135.198112d.0671>. – Дата обращения: 22.06.2022.
14. Blistering of the selected materials irradiated by intense 200 keV proton beam / V. Astrelin, A. Burdakov, P. Vykov [et al.]. – Текст : электронный // *Journal of Nuclear Materials*. – 2010. – Vol. 396. – P. 43-48. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2009.10.051>. – Дата публикации: 1.01.2010.
15. Ono, K. Prospects for new era of boron neutron capture therapy and subjects for the future / K. Ono. – Текст : электронный // *Therapeutic Radiology and Oncology*. –

2018. – Vol. 2. – P. 1-7. – URL: <https://doi.org/10.21037/tro.2018.09.04>. – Дата публикации: 07.10.2018.
16. A study of the production of neutrons for Boron Neutron Capture Therapy using a proton accelerator. T. Edgecock, J. Bennett, S. Green [et al.]. – Текст : непосредственный // Proceedings of IPAC2014 (Dresden, Germany, 15 June 2014). – Dresden, 2014. – WEPRO099.
17. Neutron target research and development for BNCT: direct observation of proton induced blistering using light-polarization and reflectivity changes / T. Kurihara, H. Kobayashi, H. Matsumoto, M. Yoshioka. – Текст : электронный // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2015. – Vol. 305. – P. 935-942. – URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-015-4056-y>. – Дата публикации: 17.03.2015.
18. Fagotti, E. MUNES project: status and perspectives of an RFQ based neutron facility in Italy / E. Fragotti. – Текст : непосредственный // Symposium for North Eastern Accelerator Personnel (Legnaro, Italy, 30 September – 5 October 2012). – Legnaro, 2012.
19. Construction of a BNCT facility using an 8-MeV high power proton linac in Tokai / H. Kobayashi, T. Kurihara, H. Matsumoto [et al.]. – Текст : непосредственный // Proceedings of IPAC2012 (New Orleans, Louisiana, USA, 20-25 May). – New Orleans, 2012. – THPPR048.
20. Kiyonagi, Y. Accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy / Y. Kiyonagi. – Текст : электронный // Ther. Radiol. Oncol. – 2018. – Vol. 2. – P. 55-67. – URL: <https://doi.org/10.21037/tro.2018.10.05>. – Дата публикации: 23.11.2018.
21. The Kinetic Behaviors of H Impurities in the Li/Ta Bilayer: Application for the Accelerator-Based BNCT / X. Liu, H. Chen, J. Tong [et al.]. – Текст : электронный // Nanomaterials. – 2019. – Vol. 9, nr 8. – P. 1107. – URL: <https://doi.org/10.3390/nano9081107>. – Дата публикации: 02.08.2019.
22. The Soreq Applied Research Accelerator Facility (SARAF): Overview, Research Programs and Plans / I. Mardor, O. Aviv, M. Avrigeanu [et al.]. – Текст : электронный

- // Eur. Phys. J. A. – 2018. – Vol. 54, nr 91. – P. 32. – URL: <https://doi.org/10.1140/epja/i2018-12526-2>. – Дата публикации: 31.05.2018.
23. Conceptual design of compact-multichanel neutron moderator for accelerator based BNCT system // Н. Коау, Н. Toki, М. Fukuda [et al.]. – Текст : непосредственный // Proceedings of the 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (Sapporo, Japan, 1-3 August 2017). – Sapporo, 2017. – PASJ2017 WEP124.
24. Bayanov B. Neutron producing target for accelerator based neutron capture therapy / В. Bayanov, V. Belov, S. Taskaev. – Текст : непосредственный // J. Phys.: Conference Series. – 2006. – Vol. 41. – P. 460-465.
25. Касатов, Д.А. Исследование материалов нейтроногенерирующей мишени для бор-нейтронозахватной терапии : специальность 1.13.18 «Физика пучков заряженных частиц и ускорительная техника» : диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук / Касатов Дмитрий Александрович ; Институт ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2022. – 143 с. – Текст: непосредственный.
26. A study of gamma-ray and neutron radiation in the interaction of a 2 MeV proton beam with various materials / D. Kasatov, A. Makarov, I. Shchudlo, S. Taskaev. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2015. – V.106. – P. 38-40. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.08.011>. – Дата публикации: 13.08.2018.
27. Business Wire: [сайт]. – URL: <https://www.businesswire.com/news/home/20210926005023/en/TAE-Life-Sciences-Announces-Installation-of-First-Accelerator-based-Neutron-Beam-System-for-Biologically-Targeted-Radiation-Therapy-at-Xiamen-Humanity-Hospital-in-China/> (дата обращения: 01.06.2022) – Яз. англ. – Текст : электронный.
28. *In Situ* Observations of Blistering of a Metal Irradiated with 2-MeV Protons / А. Badrutdinov, Т. Выков, S. Gromilov [et al.]. – Текст : непосредственный // Metals. – 2017. – Vol. 7, nr 12 – P. 558.

29. *In situ* study of the blistering effect of copper with a thin lithium layer on the neutron yield in the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction / Т. Быков, N. Goloshevskii, S. Gromilov [et al.]. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2020. – Vol. 481. – P. 62-81. – URL: <https://doi.org/10.3390/met7120558>. – 12.12.2017.
30. Method for *in situ* measuring the thickness of a lithium layer / D. Kasatov, Ia. Kolesnikov, A. Koshkarev [et al.]. – Текст : электронный // JINST. – 2020. – Vol. 15. – P10006. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/15/10/P10006>. – Дата публикации: 12.10.2020.
31. Measurement of the ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ reaction cross-section and 478 keV photon yield from a thick lithium target at proton energies from 0.7 to 1.85 MeV / Т. Быков, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [e al.]. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2021. – Vol. 175. – 109821. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2021.109821>. – Дата публикации: 09.06.2021.
32. Makarov, A. The Luminescence of a Lithium Target under Irradiation with a Proton Beam / A. Makarov, E. Sokolova, S. Taskaev. – Текст : электронный // Instruments and Experimental Techniques. – 2021. – Vol. 64, nr 1. – P. 24-27. – URL: <http://dx.doi.org/10.1134/S0020441220060184>. – Дата публикации: 25.02.2021.
33. Sokolova, E. Diagnostics of the Proton Beam Position Using the Luminescence of a Lithium Neutron-Generating Target / E. Sokolova, A. Makarov, S. Taskaev. – Текст : непосредственный // Proc. of the XXVII Russian Particle Accelerator Conference (Alushta, 26 September – 2 October 2021). – Alushta, 2021. – WEPSC29.
34. United States Patent № US 2022/0030696 A, Int. Cl. H05H 6/00 (2006.01), U.S. Cl. CPC H05H 6/00 (2013.01), A61N 2005/109 (2013.01). Systems, devices, and methods for deformation reduction and resistance in metallic bodies : № 17/383,188 : заявл. 22.07.2021 : опубл. 27.01.2022 / Taskaev S., Makarov A., Sokolova E. ; заявитель :TAE Technologies, Inc., 3 Foothill Ranch, CA (US). – 15 P. : ил. – Текст : непосредственный.

35. Sokolova, E. *In situ* observation of blistering on the Cu samples, irradiated by 2 MeV energy protons / E. Sokolova. – Текст : непосредственный // Workshop on Lithium Target for BNCT (Onna-son, Okinawa, Japan, 8-10 November, 2017). – Onna-son, 2017. – P. 4-5.
36. *In situ* observation of blistering during irradiation of metals by protons / A. Badrutdinov, T. Bykov, Y. Higashi [et al.]. – Текст : непосредственный // Programme and Abstracts of the 9th Young Researchers' BNCT Meeting (Kyoto, Japan 13-15 November 2017). – Kyoto, 2017. – P. 106.
37. System of a Thin Lithium Layer Deposition for an Accelerator Based Neutron Source / B. Bayanov, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of abstracts of the 10th Young Researchers BNCT Meeting (Helsinki, Finland 26-29 September 2019). – Helsinki, 2019. – P. 17.
38. Observation of the luminescence on the lithium neutron generating target under proton beam irradiation / E. Sokolova, T. Bykov, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of abstracts of the 10th Young Researchers BNCT Meeting (Helsinki, Finland 26-29 September 2019). – Helsinki, 2019. – P. 18.
39. Diagnostics of the proton beam position using the luminescence of the lithium neutron producing target / E. Sokolova, T. Bykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : непосредственный // Asian Forum for Accelerators and Detectors (AFAD) (Novosibirsk, 16-18 March 2021). – Novosibirsk, 2021.
40. Luminescence of the lithium neutron generating target under proton beam irradiation / T. Bykov, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of Abstracts of the 19th International Congress on Neutron Capture Therapy (Granada, Spain, 27 September – 1 October 1 2021). – Granada, 2021. – P. 98.
41. Measurement of the lithium layer thickness using a proton beam / D. Kasatov, A. Koshkarev, A. Makarov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of Abstracts of the 19th International Congress on Neutron Capture Therapy (Granada, Spain, 27 September – 1 October 1 2021). – Granada, 2021. – P. 96.

42. Current Status of Neutron Capture Therapy (IAEA-TECDOC-1223 report) / Vienna, Austria : International Atomic Energy Agency, 2001. – 292 P. – ISSN 1011–4289. – Текст : непосредственный.
43. Таскаев, С. Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов : специальность 01.04.01 «Приборы и методы экспериментальной физики» : диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук / Таскаев Сергей Юрьевич ; Институт ядерной физики имени Г.И.Будкера СО РАН. – Новосибирск, 2014. – 295 с. – Текст: непосредственный.
44. International Society for Neutron Capture Therapy : [сайт]. – URL: <https://isnct.net/bnct-boron-neutron-capture-therapy/accelerator-based-bnct-projects-2021/> (дата обращения: 02.06.2022). – Яз. англ. – Текст : электронный.
45. Proton irradiation at kilowatt-power and neutron production from a free-surface liquid-lithium target / S. Halfon, A. Arenshtam, D. Kijel [et al.]. – Текст : электронный // Review of Scientific Instruments. – 2014. – Vol. 85. – P. 056105. – URL: <https://doi.org/10.1063/1.4878627>. – Дата публикации: 21.05.2014.
46. Future of Accelerator Based BNCT Neutron Irradiation System using Liquid Lithium Target / Т. Kobayashi, N. Hayashizaki, Т. Katabuchi [et al.]. – Текст : электронный // IEEE Transactions on Electronics Information and Systems. – 2014. – Vol. 134, nr 9. – P. 1406-1413. – URL: <https://doi.org/10.1541/ieejeiss.134.1406>. – Дата публикации: 01.09.2014.
47. United States Patent № US 2017/0062086 A1, Int. Ci. G2G L/10 (2006.01), A61N 5/10 (2006.01), H05H 6/00 (2006.01), U.S. CI. CPC G21G 1/10 (2013.01), H05H 6/00 (2013.01), A61N 5/1077 (2013.01), A61N 2005/1087 (2013.01), A61N 2005/109 (2013.01). Neutron target for boron neutron capture therapy : № 15/147.565 : заявл. 05.04.2016 : опубл. 02.03.2017 / Park W, Konish S., Smick T., Sakase T.; заявитель : Neutron Therapeutics Inc., Danvers, MA (US). – 13 P. : ил. – Текст : непосредственный.
48. Development of a sealed lithium target for BNCT in Nagoya University / S. Honda, S. Yoshihashi, K. Tsuchida [et al.]. – Текст : электронный // Book of abstracts of the

- 10th Young Researchers BNCT Meeting (Helsinki, Finland 26-29 September, 2019). – Helsinki, 2019.
49. High heat removal technique for a lithium neutron generation target used for an accelerator-driven BNCT system / S. Yoshihashi, T. Tsuneyoshi, K. Tsuchida [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2021. – Vol. 16. – P04016. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/04/P04016>. – Дата публикации: 30.04.2021.
50. Willis, C. High-power lithium target for accelerator-based BNCT / C. Willis, J. Lenz, D. Swenson. – Текст : непосредственный // Proc. XXIV Linear Accelerator Conference (Victoria, British Columbia, Canada, 29 September – 3 October 2008). – Victoria, 2008. – P. 223-225.
51. Status of the Birmingham accelerator based BNCT facility. In: Sauerwein W., Moss R. and Wittig A. (eds.). Research and Development in Neutron Capture Therapy / T. Beynon, K. Forcey, S. Green [et al.]. – Bologna : Monduzzi Editore, Intern. Proc. Division, 2002. – P. 225-228.
52. Brown, A. The design and testing high power lithium target for accelerator-based boron neutron capture therapy. In: Sauerwein W., Moss R. and Wittig A. (eds.). Research and Development in Neutron Capture Therapy / A. Brown, K. Forsey, M. Scott. – Bologna : Monduzzi Editore. – 2002. – P. 277-282.
53. Изучение влияния остаточного газа на литиевый слой нейтроногенерирующей мишени / Б.Ф. Баянов, В.И. Ободников, С.Ю. Таскаев, Е.Г. Тишковский. – Текст : непосредственный // Препринт ИЯФ. – 2007. – Т. 2.
54. Accelerator based neutron source for the neutron-capture and fast neutron therapy at hospital / B. Bayanov, V. Belov, E. Bender [et al.]. – Текст электронный // Nuclear Instrum. and Methods – 1998. – Vol. A413. – P. 397-426. – URL: [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(98\)00425-2](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00425-2). – Дата публикации: 21.08.1998.
55. Таскаев, С.Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов / С. Ю. Таскаев. – Текст : непосредственный // Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 2015. – Т. 46, вып. 6 – С. 1770-1830.

56. Таскаев, С.Ю. Разработка ускорительного источника эпитепловых нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии / С. Ю. Таскаев. – Текст : электронный // Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 2019. – Т. 50, вып. 5. – С. 657-669. – URL: <https://doi.org/10.1134/S1063779619050228/>. – Дата публикации: 01.09.2019.
57. Belchenko, Y. Surface-plasma negative ion source for the medicine accelerator / Y. Belchenko, E. Grigoryev. – Текст : электронный // Review of Scientific Instruments. – 2002. – Vol. 73. – P. 939. - <https://doi.org/10.1063/1.1432463>. – Дата публикации: 19.02.2002.
58. Lithium neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source / B. Bayanov, V. Belov, V. Kindyuk [et al.]. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2004. – Vol. 61, nr 5. – P. 817-821. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2004.05.032>. – Дата обращения: 22.06.2022.
59. Касатов, Д. А. Излучение при поглощении протонов с энергией 2 МэВ в различных материалах / Д. А. Касатов, А. Н. Макаров, С. Ю. Таскаев, И. М. Щудло. – Текст : непосредственный // Ядерная физика. – 2015. – Т. 78, вып. 11. – С. 963-969.
60. Thermal Stability of BNCT Neutron Production Target Synthesized by *In-Situ* Lithium Deposition and Ion Implantation / S. Ishiyama, Y. Baba, R. Fujii [et al.]. – Текст : электронный // Materials Transactions. – 2013. – Vol. 54, nr 9. – P. 1760-1764. – URL: <https://doi.org/10.2320/matertrans.M2013062>. – Дата обращения: 22.06.2022.
61. Cyclotron-based neutron source for BNCT / T. Mitsumoto, S. Yajima, H. Tsutsui [et al.]. – Текст : непосредственный // Proc. XIV International Congress on Neutron Capture Therapy (Buenos Aires, Argentina 25-29 October 2010), – Buenos Aires, 2010. – P. 510-522.
62. Источник эпитепловых нейтронов на основе ускорителя для нейтронозахватной терапии / В.Н. Кононов, М.В. Боховко, О.Е. Кононов, А.Н.

- Соловьев – Текст : непосредственный // Атомная энергия. – 2004. – Т. 97, вып. 3. – С. 195.
63. Construction of a BNCT facility using an 8-MeV high power proton linac in Tokai / Н. Kobayashi, Т. Kurihara, Н. Matsumoto [et al.]. // Proceedings of IPAC2012, New Orleans, Louisiana, USA. – 2012. – THPPR048.
64. Yoshioka, M. Review of accelerator-based boron neutron capture therapy machines / М. Yoshioka. – Текст : непосредственный // Proc. of IPAC2016 (Busan, Korea, 2016). – Busan, 2016. – THXB01.
65. Баянов, Б. Ф. Измерение толщины литиевого слоя / Б.Ф. Баянов, Е.В. Журов, С.Ю. Таскаев. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2008. – Vol. 1. – С. 160-162. – URL: <https://doi.org/10.1007/s10786-008-1020-x>. – Дата обращения: 22.06.2022.
66. Lee, C. Thick target neutron yields for the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold / С. Lee, X. Zhou. – Текст : электронный // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. – 1999. – V. 152. – P. 1-11. – URL: [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(99\)00026-9](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00026-9). – Дата публикации: 01.04.1999.
67. Andersen, H. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements. Volume 3 of the stopping and ranges of ions in matter / H. Andersen, J. Ziegler. – New York, Toronto, Oxford, Sydney, Frankfurt, Paris : Pergamon Press Inc., 1977 – ISBN 0-08-021605-6. – Текст : непосредственный.
68. Beam Shaping Assembly Design of ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Neutron Source for Boron Neutron Capture Therapy of Deep-seated Tumor / L. Zaidi, M. Belgaid, S. Taskaev, R. Khelifi. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2018. – Vol. 139. – P. 316-324. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.05.029/>. – Дата публикации: 31.05.2018.
69. Panchenko, A. The technique of X-ray diffraction investigation of crystal aggregates / А. Panchenko, N. Tolstykh, S. Gromilov. – Текст : электронный // J. Structural Chemistry. – 2014. – Vol. 55, nr 7. – P. 1209-1214. – URL: <http://dx.doi.org/10.1134/S002247661407004X>. – Дата публикации: 28.01.2015.

70. Brown, A. Development of high-power producing lithium target for Boron Neutron Capture Therapy. Ph.D Thesis, University of Birmingham, UK, 2000.
71. Гоулдстейн, Д. Практическая растровая электронная микроскопия / Д. Гоулдстейн, Х. Якевица. – Москва : Мир, 1978. – 656 с.
72. Нозик, Ю. З. Структурная нейтронография. В 2 томах. Том 1 / Ю.З. Нозик, Р.П. Озеров, К. Хениг. – Москва: Атомиздат, 1979. – 68 с.
73. Немец, О. Ф. Справочник по ядерной физике / Немец О.Ф., Гофман Ю.В. – Киев : Наукова Думка, 1975. – 218 с.
74. Antilla, A. Proton-induced thick-target gamma-ray yields for the elemental analysis of the $Z = 3-9, 11-21$ elements / A. Antilla, R. Hanninen, J. Raisanen. – Текст : электронный // J. Radioanalytical Chemistry. – 1981. – Vol. 62. – P. 293-306. – URL: <https://doi.org/10.1007/bf02517360>. – Дата публикации: 01.03.1981.
75. Savidou, A. Proton induced thick target γ -ray yields of light nuclei at the energy region $E_p = 1.0-4.1$ MeV / A. Savidou, X. Aslanoglou, T. Paradellis, M. Pilakouta. – Текст : электронный // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – 1999. – Vol. 152. – P. 12-18. – URL: [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(98\)00962-8](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(98)00962-8). – Дата публикации: 01.04.1999.
76. Saito, T. Measurement of thick-target gamma-ray production yields of the ${}^7\text{Li}(p,p'){}^7\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ reactions in the near-threshold energy region for the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction / T. Saito, T. Katabuchi, B. Hales, M. Igashira. – Текст : электронный // J. Nucl. Science and Techn. – 2017. – Vol. 54. – P. 253-259. – URL: <https://doi.org/10.1080/00223131.2016.1255576>. – Дата публикации: 18.11.2016.
77. Kasatov, D. A study of gamma-ray and neutron radiation in the interaction of a 2 MeV proton beam with various materials / D. Kasatov, A. Makarov, I. Shchudlo, S. Taskaev. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2015. – Vol. 106. – P. 38-40. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.08.011>. – Дата публикации: 13.08.2015.
78. Ahmadi Ganjeh, Z. A study of the simulation of the influence on formed neutron spectrum when Li target was covered with polyimide protective film / Z. Ahmadi

- Ganjeh, M. Eslami-Kalantari. – Текст : электронный // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2018. – Vol. 318, nr 2. – P. 1025-1031. – URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-018-6161-1>. – Дата публикации: 28.09.2018.
79. Low temperature and pressure synthesis of lithium-nitride compound with H₂O addition on lithium target for BNCT / S. Ishiyama, Yu. Baba, R. Fujii [et al.]. – Текст : электронный // Materials Transactions. – 2013. – Vol. 54, nr 12. – P. 2233-2237. – URL: <https://doi.org/10.2320/jinstmet.J2013078>. – Дата обращения: 22.06.2022.
80. Tsuchida, K., Kiyanagi, Yo. – Текст : непосредственный // Proceedings from 7th High Power Targetry Workshop (East Lansing, Michigan, USA 4-8 June 2018). – East Lansing, 2018.
81. Depositing a Titanium Coating on the Lithium Neutron Production Target by Magnetron Sputtering Technology / Z. Qiao, X. Li, Y. Lv [et al.]. – Текст : электронный // Materials. – 2021. – Vol.14. – P.1873. – URL: <https://doi.org/10.3390/ma14081873>. – Дата публикации: 09.04.2021.
82. An installation for magnetron deposition of getter coatings in narrow-aperture chambers / V. Anashin, A. Zhukov, A. Krasnov [et al.]. – Текст : электронный // Instrum. Exp. Tech. – 2009. – Vol. 52. – P. 882. – URL: <https://doi.org/10.1134/S0020441209060232>. – Дата публикации: 09.12.2009.
83. Measurement of the ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ reaction cross-section and 478 keV photon yield from a thick lithium target at proton energies from 0.65 MeV to 2.225 MeV / S. Taskaev, T. Vykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B. – 2021. – Vol. 502. – P. 85-94. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2021.06.010>. – Дата публикации: 01.09.2021.
84. The measurement of the neutron yield of the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction in lithium targets / M. Vikchurina, T. Vykov, D. Kasatov [et al.]. – Текст : электронный // Biology. – 2021. – Vol. 10. – P. 824. – URL: <https://doi.org/10.3390/biology10090824>. – Дата публикации: 24.08.2021.
85. *In situ* observation of blistering of a metal irradiated with 2 MeV protons / S. Taskaev, D. Kasatov, A. Makarov [et al.]. – Текст : электронный // Proc. of the 9th International

- Particle Accelerator Conference (Vancouver, Canada 29 April – 4 May 2018). – Vancouver, 2018. – MOPML063. – URL: <http://dx.doi.org/10.3390/met7120558>. -
86. *In situ* Observations of Blistering of a Metal Irradiated with 2-MeV Protons / A. Badrutdinov, T. Bykov, S. Gromilov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of abstracts of the 18th International Congress on Neutron Capture Therapy (Taipei, Taiwan 28 October – 4 November 2018). – Taipei, 2018. – P. 60-62.
87. Measurement of neutron and gamma dose rates from a lithium target at proton energies up to 2.3 MeV and lithium thicknesses from 1 to 208 μm / Т. Выков, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of Abstracts of the 19th International Congress on Neutron Capture Therapy (Granada, Spain, 27 September – 1 October 2021). – Granada, 2021. – P. 109.
88. Development of the protective layer for the lithium neutron generating target / A. Makarov, A. Krasnov, E. Sokolova, S. Taskaev. – Текст : непосредственный // Book of Abstracts of the 19th International Congress on Neutron Capture Therapy (Granada, Spain, 27 September – 1 October 2021). – Granada, 2021. – P. 97.
89. Measurement of the ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ reaction cross-section and 478 keV photon yield from a thick lithium target at proton energies from 0.7 to 1.85 MeV / Т. Выков, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [et al.]. – Текст : непосредственный // Book of Abstracts of the 19th International Congress on Neutron Capture Therapy (Granada, Spain, 27 September – 1 October 2021). – Granada, 2021. – P. 110.
90. Qualification of Boron Carbide Ceramics for Use in ITER Ports / A. Shoshin, A. Burdakov, M. Ivantsivskiy [et al.]. – Текст : электронный // IEEE Transactions on Plasma Science. – 2020. – Vol. 48, nr 6. – P. 1474. – URL: <https://doi.org/10.1109/TPS.2019.2937605>. – Дата обращения: 22.06.2022.
91. Источник быстрых нейтронов на основе ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией и литиевой мишени / Д.А. Касатов, А.М. Кошкарев, А.Н. Макаров [и др.]. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2020. – № 5. – С. 5-9. – URL: <https://doi.org/10.31857/S0032816220050158>. – Дата публикации: 10.03.2020.

92. Диагностика эффективности газовой обдирочной мишени ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией / Я.А. Колесников, А.М. Кошкарев, С.Ю. Таскаев, И.М. Щудло. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2020. – № 3. – С. 25-29. – URL: <https://doi.org/10.31857/S0032816220040060>. – Дата публикации: 27.01.2020.
93. Измерение тока пучка ионов аргона, сопутствующего пучку протонов, в ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией / Я. А. Колесников, Г. М. Остреинов, П. Д. Пономарев [и др.]. – Текст : электронный // Приборы и техника эксперимента. – 2021. – № 4. – С. 5-9. – URL: <https://doi.org/10.31857/S0032816221040194>. – Дата публикации: 19.03.2021.
94. Physics world : [сайт]. – URL: <https://physicsworld.com/a/boron-neutron-capture-therapy-is-back-on-the-agenda/> (дата обращения: 03.06.2022). – Яз. англ. – Текст : электронный.
95. Vykov, T. Automatization of gamma-spectrometry diagnostics on accelerator neutron source for BNCT / T. Vykov. – Текст : непосредственный // Book of abstracts of the 10th Young Researchers BNCT Meeting (Helsinki, Finland, 26-29 September 2019). – Helsinki, 2019.
96. Zaidi, L. Beam shaping assembly optimization for Boron Neutron Capture Therapy (BNCT). Ph.D Thesis, University of Science and Technology Houari Boumedienne, Algeria, 2018.
97. Liquid metal chemical reaction safety in fusion facilities / S. Piet, D. Jeppson, L. Muhlestein [et al.]. – Текст : электронный // Fusion Engineering and Design. – Vol. 5, nr 3. – 1987. – P. 273-298. – URL: [https://doi.org/10.1016/S0920-3796\(87\)90032-9](https://doi.org/10.1016/S0920-3796(87)90032-9). – Дата обращения: 22.06.2022.
98. Barnett, S. Consequences of a Lithium Spill in-Side the Containment and Vacuum Torus of a Fusion Reactor / S. Barnett, M. Kazimi. – Cambridge, MA, USA : MIT Plasma Fusion Center, 1987. – P. 48. – Текст : непосредственный.

99. Соколова, Е. О. Исследование влияния радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из тонкого литиевого слоя нейтроногенерирующей мишени и метод измерения толщины литиевого слоя : специальность 1.3.9 «Физика плазмы» : научно-квалификационная работа аспиранта / Соколова Евгения Олеговна ; Новосибирский государственный университет. – Новосибирск, 2022. – 65 с. – Текст : непосредственный.