

*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

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Новосибирск – 2022

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте ядерной физики им. Г.И. Будкера Сибирского отделения Российской академии наук.

НАУЧНЫЙ РУКОВОДИТЕЛЬ – доктор физико-математических наук  
Таскаев Сергей Юрьевич

#### ОФИЦИАЛЬНЫЕ ОППОНЕНТЫ:

ОКС Ефим Михайлович – доктор технических наук, профессор, Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники», заведующий кафедрой физики

СКАЛЬГА Вадим Александрович – доктор физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук», заместитель директора по научной работе

ВЕДУЩАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ – Международная межправительственная организация «Объединенный институт ядерных исследований»

Защита диссертации состоится «07» декабря 2022 года в «14:00» часов на заседании диссертационного совета 24.1.162.02 на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института ядерной физики им. Г.И. Будкера Сибирского отделения Российской академии наук по адресу: 630090, г. Новосибирск, проспект Академика Лаврентьева, 11.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института ядерной физики им. Г.И. Будкера Сибирского отделения Российской академии наук и на сайте <https://inp.nsk.su/obrazovanie/dissertatsionnye-sovety#24-1-162-02>.

Автореферат разослан «19» октября 2022 года.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
доктор физико-математических наук



Багрянский Петр Андреевич

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы исследования

Методика бор-нейтронозахватной терапии лечения злокачественных опухолей (БНЗТ), предложенная в 1936 году, прошла стадию клинических испытаний на исследовательских ядерных реакторах, на ускорительных источниках нейтронов и вступает в стадию клинического применения. С 2020 года 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 года 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 не менее 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. 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. В ИЯФ СО РАН предложена и разработана тонкая литиевая мишень<sup>1</sup>, представляющая собой слой металлического лития, нанесенного на медную подложку, охлаждаемую водой. 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  $\gamma$ -излучения без уменьшения выхода нейтронов.

---

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

## Цели и задачи

**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 поверхности литиевой мишени 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.
2. Изучить люминесценцию поверхности литиевой мишени 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

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 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.

## Личный вклад автора

**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.

### **Теоретическая и практическая значимость работы**

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

Разработанная тонкая литиевая мишень, стойкая к радиационному блистерингу и однородная по толщине, используется в ускорительном источнике нейтронов, поставленного в БНЗТ центр г. Сямынь (провинция Фуцзянь, Китай) – первую в Китае и одну из первых шести клиник 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.

### **Методология и методы исследования**

Методологической основой диссертационной работы являются расчетно-теоретические и экспериментальные исследования излучения, создаваемого

пучком заряженных частиц, и исследования взаимодействия пучка заряженных частиц с мишенью.

### **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 результатов**

Достоверность полученных результатов подтверждена длительной эксплуатацией литиевой мишени на ускорительном источнике нейтронов ИЯФ СО РАН и генерацией нейтронов в центре БНЗТ г. Сямьнь.

Основные результаты исследований, лежащие в основе диссертации, докладывались автором лично и обсуждались на 5 международных и 1 российской конференциях: 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».

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).

По теме диссертации опубликовано 7 работ, из них 5 в рецензируемых научных журналах из списка ВАК и 1 в трудах конференции, получен патент на изобретение. Все 6 работ проиндексированы в базе данных Скопус (SCOPUS), 5 из которых в базе данных Сеть науки (Web of Science Core Collection).

### **Структура и объем диссертации**

Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Объем диссертации составляет 127 страниц и включает 67 рисунков, 3 таблицы и список литературы из 99 наименований.

## **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

**Во введении** обоснована актуальность проведения исследований, определена цель, сформулированы задачи, отмечена научная новизны темы исследования, показана теоретическая и практическая значимость полученных результатов, представлены научные положения, выносимые на защиту.

**Первая глава** посвящена нейтроногенерирующим мишеням для БНЗТ.

В параграфе **1.1** приведено краткое описание методики БНЗТ и указаны рекомендуемые характеристики пучка нейтронов. Отмечено, что широкое внедрение методики БНЗТ в клиническую практику видится только с использованием ускорительных источников нейтронов, которые по сравнению с ядерными реакторами компактны, безопасны и могут быть установлены в онкологических клиниках. Приведены основные характеристики ядерных реакций, рассматриваемых для БНЗТ –  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ ,  ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$ ,  ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$ ,  ${}^{13}\text{C}(d,n){}^{14}\text{N}$ . Отмечено, что 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. 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.

Использование бериллия или углерода рассматривают в качестве альтернативы, поскольку они проще в обращении. Однако для сопоставимого выхода нейтронов эти реакции 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 к нежелательному уширению спектра нейтронов. Ввиду всего сказанного, при создании “идеального” источника эпитепловых нейтронов для БНЗТ необходимо использовать реакцию  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ .

Для создания оптимальной литиевой мишени необходимо соблюсти следующие требования: литиевый слой – тонкий, твердый и из чистого металлического лития; подложка, на которую напыляют литиевый слой – тонкая, интенсивно охлаждаемая, стойкая к радиационному блистерингу, простая в изготовлении и легкоъемная для утилизации.

В параграфе 1.2 кратко представлен обзор реализуемых ускорительных проектов БНЗТ и в деталях описаны разрабатываемые нейтроногенерирующие мишени: со струей жидкого лития, вращающиеся с твердым литием и стационарные с твердым литием.

В параграфе 1.3 приведено описание литиевой мишени ИЯФ СО РАН. Мишенный узел (рисунок 1) выполнен в виде алюминиевой трубы с минимальным внутренним диаметром 100 мм. С помощью шибера узел стыкуют к установке или к разработанному стенду напыления лития. На торец мишенного узла уплотняют медный диск диаметром 144 мм толщиной 8 мм. 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. 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.

Напыление лития на мишень осуществляют на отдельном разработанном стенде напыления лития (рисунок 2). 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.



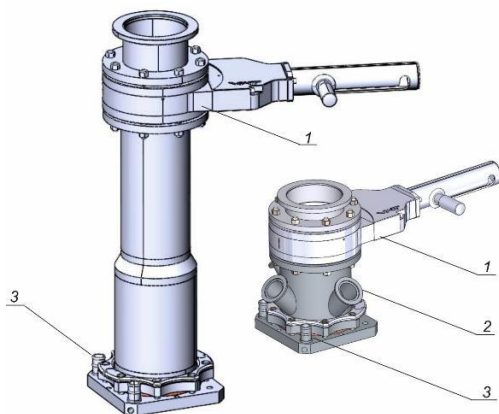
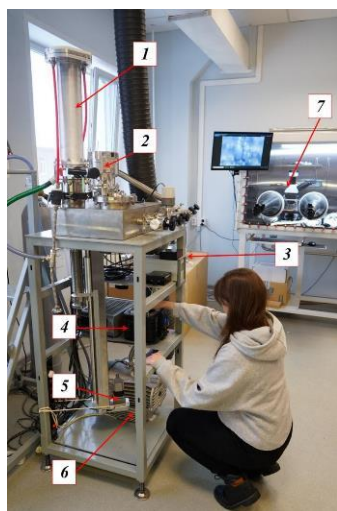
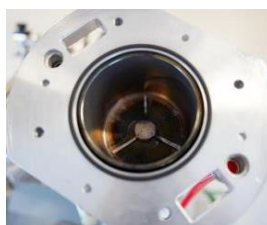


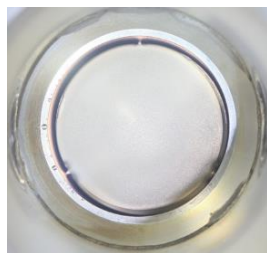
Рисунок 1 – Мишенные узлы: для размещения внутри системы формирования пучка нейтронов с замедлителем из фторида магния (слева), для проведения научных исследований с возможностью наблюдения за мишенью (справа): 1 – шиббер, 2 – патрубки, 3 – тонкая литиевая мишень



(а)



(б)



(в)

Рисунок 2 – 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, заполненном аргоном. Перед напылением необходимое количество лития взвешивают на лабораторных микровесах 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 и устанавливают мишенный узел на стенд. Затем стенд напыления лития вместе с мишенным узлом откачивают, 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 °С. 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.

**Вторая глава** посвящена исследованию влияния радиационного блистеринга меди на выход нейтронов из тонкой литиевой мишени.

Мишень выполнена в виде тонкого литиевого слоя (порядка 60 мкм), напыленного на эффективно охлаждаемую медную подложку. Генерацию нейтронов осуществляют в результате пороговой реакции  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  путем направления пучка протонов на литиевую мишень. Толщину литиевого слоя выбирают такой, 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, который должен хорошо отводить тепло, слабо излучать под действием протонов и быть стойким к радиационному блистерингу – деформации поверхностного слоя 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, поскольку он может делать мишень непригодной к эксплуатации, или может ограничивать время эксплуатации, или может создать проблемы при клиническом применении. Для решения проблемы блистеринга, важность которой подчеркивается во всех работах, предлагают различные решения: использование мишени с толщиной меньше длины пробега протонов, или, 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, палладий или тантал. Такое разнообразие решений связано с отсутствием знаний о влиянии блистеринга на выход нейтронов.

В параграфе 2.1 приведено описание экспериментальной установки (рисунок 3) и отмечены особенности исследования. Указано, что обычно исследуемый образец облучают пучком протонов диаметром 10 мм с током 0,5 мА по 4 ч в день и длиннофокусным микроскопом и видеокамерой наблюдают за состоянием его поверхности. Измерение мощности дозы нейтронного излучения осуществляют двумя блоками детектирования БДМН-100-07 (ООО «Доза», Россия). Измерение потока нейтронов осуществляют детектором нейтронов с литийсодержащим сцинтиллятором GS20.

После облучения образцы исследуют на спектрометре комбинационного рассеяния, на монокристалльном дифрактометре, на электронном микроскопе, на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами, на растровом электронном микроскопе, на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой параллельного действия с аксиальным и радиальным обзором плазмы.

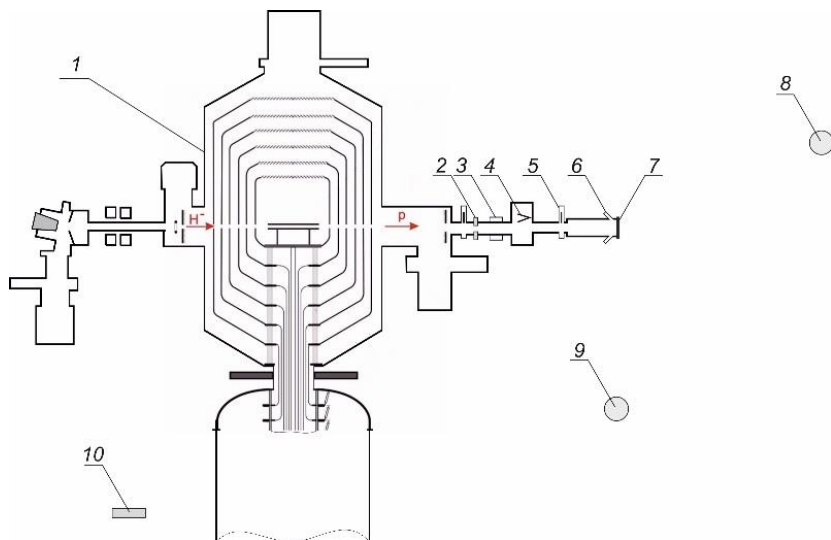


Рисунок 3 – Схема экспериментальной установки: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – охлаждаемая диафрагма апертурой 26 мм, 3 – бесконтактный датчик тока, 4 – выдвигной цилиндр Фарадея, 5 – шибер, 6 – патрубки с окнами для наблюдения, 7 – исследуемый образец, 8 – дозиметр № 1, 9 – дозиметр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

В параграфе 2.2 представлены результаты четырех серий экспериментальных исследований.

При подготовке экспериментальных образцов, а именно при напылении слоя лития выбор его толщины осуществляют с помощью выражения скорости потери энергии протона в литии в зависимости от его энергии:

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

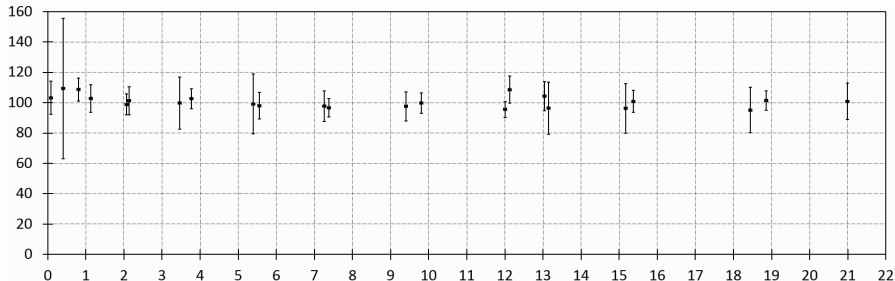
где  $S_{\text{low}} = 1,6 E^{0,45}$ ,  $S_{\text{high}} = \frac{725,6}{E} \ln(1 + \frac{3013}{E} + 0,04578 E)$ ,  $E$  берется в кэВ. С учетом этого выражения при начальной энергии протонов 2,04 МэВ генерация нейтронов будет осуществляться до глубины 22 мкм от поверхности лития.

В первой серии экспериментов (параграф 2.2.1) на медный образец напылен слой лития толщиной 84 мкм – 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. Набранный флюенс протонов составил  $6,3 \pm 0,6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ , что в 190 раз превышает порог образования блистеров на поверхности меди.

На рисунке 4 представлены зависимости мощности дозы нейтронного излучения и потока нейтронов от набранного интеграла тока. Ожидалось, что после появления блистеров выход нейтронов может значительно уменьшиться. Но из рисунка видно, что ожидаемой деградации выхода нейтронов нет. С точностью 7 % можно утверждать, что облучение мишени до флюенса, в 190 раз большего флюенса появления блистеров, не привело к деградации выхода нейтронов. Зависимости, представленные на рисунке 4, 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 БНЗТ 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.

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

$D$ , отн. ед.



$Y$ , отн. ед.

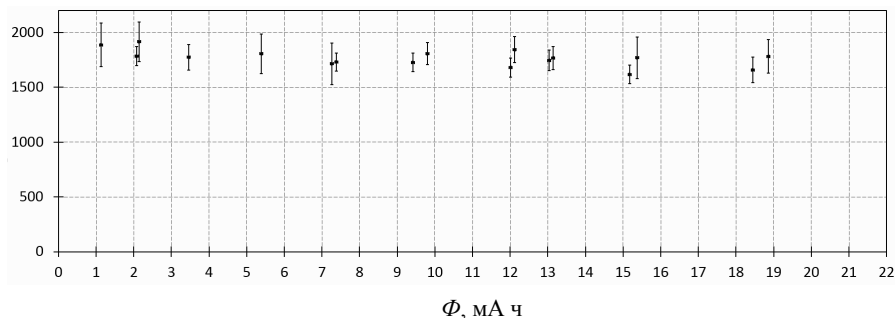


Рисунок 4 – Зависимости мощности дозы нейтронного излучения  $D$  и плотности потока нейтронов  $Y$  от набранного интеграла тока протонов  $\Phi$  ( $1 \text{ МА ч} = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ )

Наблюдение за поверхностью образца длиннофокусным микроскопом КХ InfiniMax™ показало, что в центральной области пучка достаточно быстро на поверхности лития появились блистеры, 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 (всего 11 дней 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. Из разных зон лития изъяты частицы и исследованы на монокристалльном дифрактометре. При рентгенофазовом анализе полученных дифрактограмм обнаружены фазы  $\text{LiOH}$ ,  $\text{Li}_2(\text{CO}_3)$ ,  $\text{Li}_3\text{N}$  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.

Возможно, наличие частиц в аморфном состоянии связано с сильными радиационными повреждениями. Так число смещений на атом, рассчитанное в программе SRIM, достигает значения 900 на глубине торможения протона в меди и 0,2 в литии.

После облучения литий был смыт водой, и образец исследован на сканирующем профилометре с конфокальными хроматическими сенсорами ИАиЭ СО РАН (Новосибирск, Россия). Установлено, что в области интенсивного облучения блистеров не наблюдается, в то время как на периферии видны и блистеры и кратеры.

Неожиданный результат состоял в том, согласно сложившимся представлениям облучение поверхности меди протонами с таким большим флюенсом должно приводить к значительной эрозии металла – разрушению поверхностного слоя металла в результате распыления и расслаивания, но это не наблюдается. Удаления поверхностного слоя меди нет. Объяснение данного явления может состоять в следующем. Поскольку медь покрыта слоем лития, этот слой удерживает крышки блистеров и чешуйки от их удаления из этой области. Предположим, что от меди отделился слой в виде крышек блистеров и чешуек толщиной 7 мкм (глубина остановки протона в меди), но литиевый слой удерживает их на месте, и этот отделившийся слой продолжает подвергаться воздействию протонов, которые разрушают кристаллические связи и переводят его в состояние аморфного тела. После того, как 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 меди, обеспечивая хорошую теплопроводность.

Отметим, что в результате этого длительного облучения мишени протонами через слой лития пропущено протонов в 1,62 раза больше, чем содержится ядер лития в области размера пучка. Значительное количество водорода доставлено в приповерхностный слой меди. Этот водород в результате диффузии или через образовавшиеся трещины доходит до лития. Если бы водород вступил в химическую связь с литием и образовал гидрид лития, то выход нейтронов упал бы на 30 %. Падение выхода не зарегистрировано, это означает, что выходящий из мишени водород, доставленный пучком протонов, не вступает в химическое соединение с литием.

Во второй серии экспериментов (параграф 2.2.2) специально использовали более стойкую к блистерингу медь, чтобы достовернее сравнить выход нейтронов до образования блистеров и после. Также напылили очень тонкий слой лития (9,6 мкм), чтобы изучить возможное проникновение лития в медь.

Установлено, что в момент появления блистеров выход нейтронов не изменился. Однако в течение длительного облучения зарегистрирована постоянная деградация выхода нейтронов из литиевой мишени. В течение

первых 4-х дней облучения выход нейтронов равномерно снижался на  $2,5 \pm 1$  % в день, 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 выход нейтронов составил  $63 \pm 3$  % от первоначального. Экспериментально установлено проникновение образующегося радиоактивного изотопа  ${}^7\text{Be}$  внутрь медного диска, точнее, внутрь слоя, не смываемого водой. Сделано предположение, что деградация выхода нейтронов обусловлена проникновением лития внутрь меди.

В третьей серии экспериментов (параграф **2.2.3**) напылили литий толщиной 68 мкм и увеличили плотность мощности пучка протонов до  $8 \text{ кВт/см}^2$ . При такой мощности нагрева литий стал жидким, но не стекал с поверхности вертикально установленной мишени. Несмотря на то, что толщина лития больше длины генерации нейтронов, выход нейтронов за 4 часа облучения упал на 36 %. Исследования на сканирующем профилометре показали, что поверхность меди подверглась серьезной эрозии – наблюдаются кратеры диаметром до 3 мм и глубиной до 0,2 мм.

Затем из медного диска методом электроискровой резки вырезаны два образца, отполированы и исследованы на растровом электронном микроскопе EVO 50 XVP (Zeiss, Германия). Установлено, что интенсивное облучение протонами приводит к значительной эрозии меди и к проникновению лития глубже места остановки протонов. Также 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.

В четвертой серии экспериментов (параграф **2.2.4**) установлено, что литий не проникает в медь при напылении, но проникает при облучении протонами до появления блистеров на поверхности меди.

В параграфе **2.3** выделены основные результаты и сделано предположение о взаимодействии пучка протонов с литиевой мишенью. В кратком виде результате исследования следующие.

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 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.

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

В третьей главе 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.

Спектр люминесценции, измеренный спектрометром CCS200 Compact Spectrometer (Thorlabs, США), представлен на рисунке 5. 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  $H_\alpha$ , 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.

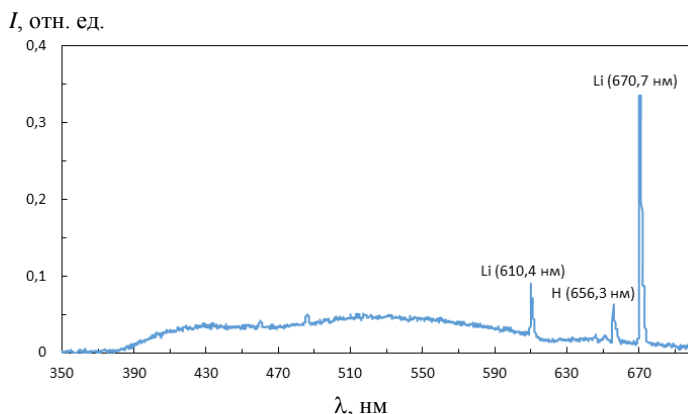


Рисунок 5 – Спектр люминесценции при облучении поверхности лития пучком протонов с энергией 2 МэВ

Люминесценция хорошо регистрируется видеокамерой и используется для оперативного контроля положения и размера пучка протонов на поверхности литиевой мишени, в том числе 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.

**Четвертая глава** посвящена предложенному и разработанному методу *in situ* измерения толщины слоя лития.

В параграфе **4.1** отмечены сложности в разработке методик измерения толщины лития, приведен обзор используемых методов измерения толщины лития и отмечена актуальность разработки метода измерения пространственного распределения толщины литиевого слоя, не приводящего к повреждению мишени.

В параграфе **4.2** приведено описание предложенного и реализованного метода *in situ* измерения толщины лития. Предпосылкой к разработке нового метода стало измерение выхода 478 кэВ фотонов из толстой литиевой мишени в реакции неупругого рассеяния протона на атомном ядре лития  ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$  (рисунок 6).

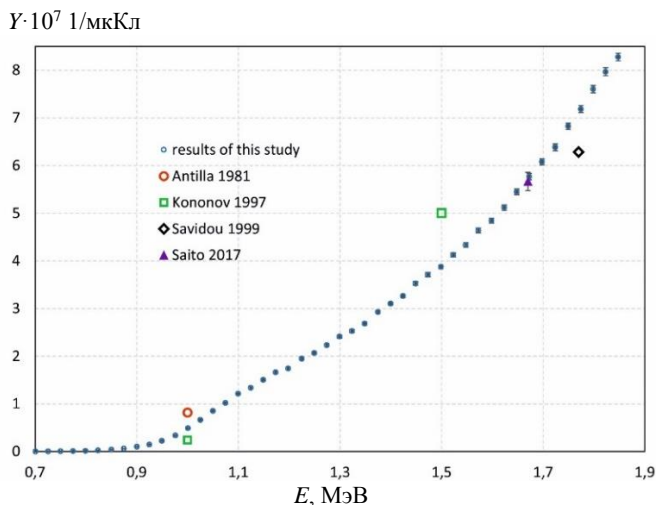


Рисунок 6 – Измеренный выход  $\gamma$ -квантов с энергией 478 кэВ из толстой литиевой мишени в реакции  ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$

Суть предложения состоит в следующем: если исследуемая мишень не толстая (на выходе из литиевого слоя энергия протонов будет больше 478 кэВ, порога реакции  ${}^7\text{Li}(p,p'\gamma){}^7\text{Li}$ ), то выход 478 кэВ фотонов из нее будет меньше, чем из толстой. Измерив отношение скорости счета 478 кэВ фотонов 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 – выражение (1).

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  $\gamma$ -квантов, и выход 478 кэВ фотонов максимальный.

Используя данные, представленные на рисунке 6, определим зависимость толщины лития  $h$  от отношения интенсивностей излучения 478 кэВ фотонов 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 фотонов при энергии протонов  $E_i$ ,  $Y_{1.85}$  – выход фотонов 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  $E_i$ . Установлено, что в диапазоне  $A$  от 0 до 0,9 экспериментально измеренные значения  $h(A)$  хорошо аппроксимируются выражением, удобным для практического применения:  $h$  (мкм) =  $45,698 A^2 + 56,281 A$ .

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  $\gamma$ -спектрометра, стойкого к потоку нейтронов.

В параграфе 4.3 приведено описание установки, на которой реализован предложенный метод измерения толщины литиевого слоя.

В параграфе 4.4 обсуждаются результаты измерения пространственного распределения толщины литиевого слоя мишеней, на которые напылен визуально однородный слой лития диаметром 90 мм со средней толщиной 200, 68 и 7,4 мкм. Пространственное распределение толщины литиевого слоя мишени с 7,4 мкм лития, хорошо согласующееся с измерением предложенным методом, измерено также по выходу нейтронов, поскольку при энергии протонов 2,05 МэВ и такой толщине лития выход нейтронов линейно зависит от толщины. Установлено, что наблюдается значительная неоднородность в толщине лития, и для создания оптимальной мишени требуется модернизация системы напыления.

В параграфе 4.5 представлены результаты численного моделирования процесса напыления с различной геометрией нагреваемого стакана и защитного экрана, определена оптимальная геометрия и описана проведенная модернизация стенда напыления. После модернизации стенда измерено пространственное распределение толщины напыленного слоя лития – оно представлено на рисунке 7. Слой лития стал однородный по толщине, приемлемый для БНЗГ.

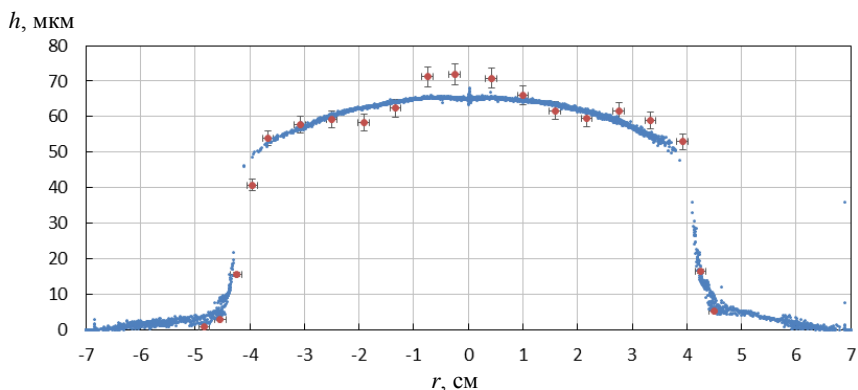


Рисунок 7 – Радиальное распределение толщины слоя лития: • – измеренное по выходу 478 кэВ фотонов, · – измеренное на конфокальном сканирующем профилометре

Для подтверждения достоверности метода измерения толщины лития по выходу 478 кэВ фотонов проведено измерение толщины сканирующим профилометром с конфокальными хроматическими сенсорами. Для этого, сначала визуально установили, что литий заметно темнеет в первые 10 мин пребывания на воздухе и больше не меняется. Затем на профилометре установили, что после открытия литиевой мишени на воздух толщина лития растет в течении 5 ч до значения, на 4 % превышающего первоначальное. Относительно незначительное изменение толщины слоя при нахождении на воздухе позволило измерить радиальное распределение лития на сканирующем конфокальном профилометре – оно представлено на рисунке 7. Видно, что результаты измерения хорошо согласуются.

В параграфе 4.6 подчеркнуто, что сравнение интенсивностей излучения 478 кэВ фотонов из исследуемого литиевого слоя и из толстого при их облучении протонами позволяет *in situ* измерять толщину слоя лития до 100 мкм без его повреждения, и этот метод может быть применен для сертификации литиевых мишеней, используемых при проведении БНЗТ.

**В заключении** представлены основные результаты работы и даны рекомендации дальнейшей разработки темы.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

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.
- Тонкая литиевая мишень используется в ускорительном источнике нейтронов для первого в Китае центра БНЗТ (Сямынь, 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.

### **Список работ, опубликованных автором по теме диссертации**

#### **В рецензируемых научных изданиях:**

1. In Situ Observations of Blistering of a Metal Irradiated with 2-MeV Protons / A. Badrutdinov, T. Bykov, S. Gromilov [et al.]. – Текст : электронный // Metals. – 2017. – Vol. 7, nr 12. – P. 558. – URL: <https://doi.org/10.3390/met7120558>. – Дата публикации: 12.12.2017.

2. *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. Bykov, 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/10.1016/j.nimb.2020.08.010>. – Дата публикации: 29.09.2020.

3. Method for *in situ* measuring the thickness of a lithium layer / D. Kasatov, Ia. Kolesnikov, A. Koshkarev [et al.]. – Текст : электронный // Journal of Instrumentation. – 2020. – Vol. 15. – P. 10006. – URL: <https://doi.org/10.1088/1748-0221/15/10/P10006>. – Дата публикации: 12.10.2020.

4. 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. Bykov, D. Kasatov, Ia. Kolesnikov [et al.]. – Текст : электронный // Applied Radiation and Isotopes. – 2021. – Vol. 175. – P. 109821. – URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2021.109821>. – Дата публикации: 09.06.2021.

5. Makarov, A. N. The Luminescence of a Lithium Target under Irradiation with a Proton Beam / A. N. Makarov, E. O. Sokolova, S. Yu. Taskaev. – Текст : электронный // Instruments and Experimental Techniques. – 2021. – Vol. 64, nr 1. – P. 24–27. – URL: <https://doi.org/10.1134/S0020441220060184>. – Дата публикации: 25.02.2021.

#### **В сборниках трудов конференций:**

1. Sokolova, E. O. Diagnostics of the Proton Beam Position Using the Luminescence of a Lithium Neutron-Generating Target / E. O. Sokolova, A. N. Makarov, S. Yu. Taskaev. – Текст : электронный // Proceedings of the XXVII Russian Particle Accelerator Conference (Alushta, 26 September – 2 October 2021). – Geneva, Switzerland, 2021. – P. 396–398. – URL:

<https://doi.org/10.18429/JACoW-RuPAC2021-WEFSC29>. – Дата публикации: 03.10.2021.

**Патент на изобретение:**

1. United States Patent № US 2022/0030696 A1, 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. Y., Makarov A. N., Sokolova E. O. ; заявитель TAE Technologies, Inc., 3 Foothill Ranch, CA (US). – 15 p. : ил. – Текст : непосредственный.

Соколова Евгения Олеговна

**Исследование и оптимизация тонкой литиевой мишени  
для генерации нейтронов**

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

---

Сдано в набор 30.09.2022.

Подписано в печать 03.10.2022.

Формат 60×90 1/16 Объем 1.0 печ.л., 0.9 уч.-изд.л.

Тираж 100 экз. Бесплатно. Заказ № 6

---

Обработано на IBM PC и отпечатано на ротапринтере ИЯФ СО РАН  
630090, Новосибирск, проспект Академика Лаврентьева, 11