

СИБИРСКИЙ ФИЗИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Научный журнал
Основан в 2006 году

2023. Том 18, № 3

СОДЕРЖАНИЕ

Физика высоких энергий, ускорителей и высокотемпературной плазмы

- Дорохова Д. В., Дорохов В. Л., Никитин С. А.* Исследование возможности применения поворотных измерений для обнаружения возмущений магнитной структуры ускорителей 5
- Рябченко К. К., Старостенко А. А.* Дипольные магниты с однородным полем проекта СКИФ 20
- Сычева Т. В., Берендеев Е. А., Верховод Г. Д., Таскаев С. Ю.* Система формирования пучка для бор-нейтронозахватной терапии поверхностных опухолей с замедлителем из материалов на основе оргстекла 31
- Глинский В. В., Волчок Е. П., Анненков В. В., Тимофеев И. В.* Механизм развития пучково-плазменного разряда в газодинамической ловушке 43

Физика твердого тела, полупроводников, наноструктур

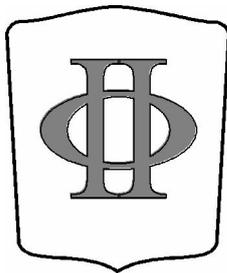
- Кучакишов Д. С., Джабаров А. Г., Холов А.* Температурная зависимость удельной теплоемкости стекол, полученных на основе $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{V}_2\text{O}_3$ 61
- Мутилин С. В., Гайдук А. Е., Яковкина Л. В., Комонов А. И., Соотс Р. А., Капогузов К. Е., Голод С. В., Принц В. Я.* Электрические и оптические переключения в наноструктурах диоксида ванадия, декорированных наночастицами золота 71
- Хартаева Э. Ч., Номоев А. В., Бардаханов С. П., Зобов К. В., Труфанов Д. Ю., Гапоненко В. Р., Цыдыпов Д. Г.* Повышение эффективности получения наночастиц латуни методом испарения непрерывным пучком электронов высокой энергии 83

Физика химическая, биологическая, медицинская

- Желнов Ю. В., Долгих В. Д., Иванов С. А., Виноградова М. Р., Мелешко Н. В., Кудинов И. В.* Получение водорода термokatалитическим разложением метана с использованием катализатора «никель на кизельгуре» 95

Учебно-методическое обеспечение преподавания физики

- Винокуров Н. А.* Вывод нестационарного уравнения Шрёдингера из стационарного 104



Сибирский физический журнал

Журнал адресован профессорско-преподавательскому составу университетов, научным работникам, аспирантам и студентам, которые интересуются новейшими результатами фундаментальных и прикладных исследований по различным направлениям физики и физико-технической информатики.

Редакция принимает к опубликованию обзоры и оригинальные научные статьи по тем направлениям физики, которые, главным образом, представлены на кафедрах физического факультета НГУ. Принимаются также к рассмотрению статьи по другим направлениям, если в ходе рецензирования подтверждается их высокий научный статус.

Мы приглашаем научные коллективы и отдельных авторов направлять к нам для опубликования материалы по следующим основным разделам:

- квантовая оптика, квантовая электроника;
- радиофизика и электроника;
- теоретическая и математическая физика;
- физика жидкости, нейтральных и ионизованных газов;
- физика высоких энергий, ускорителей и высокотемпературной плазмы;
- физика твердого тела, полупроводников, наноструктур;
- физика химическая, биологическая и медицинская;
- информатика, информационно-коммуникационные технологии;
- учебно-методическое обеспечение преподавания физики.

Периодичность выхода издания – 4 раза в год. Журнал включен в перечень ВАК выпускаемых в Российской Федерации научных и научно-технических изданий, в которых рекомендуется публикация основных результатов диссертаций на соискание ученой степени кандидата и доктора наук.

SIBERIAN JOURNAL OF PHYSICS

Scientific Journal
Since 2006
In Russian

2023. Volume 18, № 3

CONTENTS

High-Energy and Accelerator Physics, Physics of High-Temperature Plasma

- Dorokhova D. V., Dorokhov V. L., Nikitin S. A.* Investigation of the Possibility of Using Turn-by-Turn Measurements to Detect Perturbations in the Magnetic Structure of Accelerators 5
- Riabchenko K. K., Starostenko A. A.* Dipole Magnets with a Homogeneous Field of the SKIF 20
- Sycheva T. V., Berendeev E. A., Verkhovod G. D., Taskaev S. Yu.* A Neutron Beam Shaping Assembly for Boron Neutron Capture Therapy of Superficial Tumors 31
- Glinskiy V. V., Volchok E. P., Annenkov V. V., Timofeev I. V.* Mechanism of Beam-Plasma Discharge Development in GDT 43

Solid-State and Semiconductor Physics, Physics of Nanostructures

- Kuchakshoev D. S., Dzhaborov A. G., Kholov A.* Temperature Dependence of the Specific Heat Capacity Glasses Produced Based on $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$ 61
- Mutilin S. V., Gayduk A. E., Yakovkina L. V., Komonov A. I., Soots R. A., Kapoguzov K. E., Golod S. V., Prinz V. Ya.* Electrical and Optical Switching in Vanadium Dioxide Nanostructures Decorated with Gold Nanoparticles 71
- Khartaeva E. Ch., Nomoev A. V., Bardakhanov S. P., Zobov K. V., Trufanov D. Yu., Gaponenko V. R., Tsydypov D. G.* Experiments to Improve the Efficiency of Obtaining Brass Nanoparticles by Evaporation by a Continuous Beam of High-Energy Electrons 83

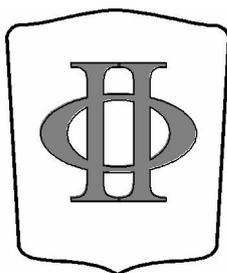
Chemical, Biological and Medical Physics

- Zhelnov Y. V., Dolgikh V. D., Ivanov S. A., Vinogradova M. R., Meleshko N. V., Kudinov I. V.* Obtaining Hydrogen by Thermocatalytic Decomposition of Methane Using a Catalyst ‘Nickel on Kieselgur’ 95

Educational and Methodological Provision of Teaching of Physics

- Vinokurov N. A.* Derivation of the Non-stationary Schrödinger Equation from the Stationary One 104
- Pipich P. V.* The Use of Computer Mathematics Systems for Solving Some Problems of Thermodynamics and Statistical Physics 113

- Instructions for Contributors 129



Siberian Journal of Physics

The magazine is addressed to the faculty of universities, science officers, post-graduate students and students who are interested in the newest results fundamental and applied researches in various directions of physics and physicotchnical computer science.

Edition accepts to publication reviews and original scientific articles in those directions of physics which, mainly, are presented on faculties of physical faculty of NSU. Are accepted also to viewing article in other directions if during reviewing their high title proves to be true.

We invite scientific personnel and separate authors to guide to us for publication materials on following basic sections:

- Quantum Optics, Quantum Electronics;
- Radiophysics and Electronics;
- The theoretical and Mathematical Physics;
- Physics of a Fluid, Neutral and Ionized Gases;
- High-Energy and Accelerator Physics, Physics of High-Temperature Plasma;
- Solid-state and semiconductor physics, physics of nanostructures;
- Chemical, Biological and Medical Physics;
- Computer Science, Information-Communication Technologies;
- Educational and Methodical Provision of Teaching of Physics

Periodicity of an exit of the edition – 4 times a year. The magazine is included in list Higher Attestation Committee of scientific and technical editions in Russian Federation in which the publication of the basic results of dissertations on competition of a scientific degree of the doctor and candidate of sciences is recommended.

*Editor in Chief Andrej V. Arzhannikov
Executive Secretary Sofiya A. Arzhannikova*

Editorial Board of the Journal

S. V. Alekseenko, A. V. Arzhannikov, A. L. Aseev, S. N. Bagaev, A. E. Bondar
S. A. Dzyuba, S. I. Eidelman, V. S. Fadin, V. M. Fomin, A. A. Ivanov, V. A. Volodin, V. V. Kozlov, E. V. Kozyrev
A. V. Latyshev, I. B. Logashenko, V. P. Maltsev, A. G. Pogosov, A. L. Reznik, A. V. Shalagin
V. I. Telnov, S. V. Tsiulya

*The series published quarterly in Russian since 2006
by Novosibirsk State University Press*

The address for correspondence
Physics Department, Novosibirsk State University
Pirogov Street 2, Novosibirsk, 630090, Russia
Tel. +7 (383) 363 44 25

*E-mail address: physics@vestnik.nsu.ru
On-line version: <http://www.phys.nsu.ru/vestnik/>*

Научная статья

УДК 621.384.6.01

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-5-19

Исследование возможности применения пооборотных измерений для обнаружения возмущений магнитной структуры ускорителей

**Дарья Вячеславовна Дорохова^{1,2}, Виктор Леонидович Дорохов^{1,2}
Сергей Алексеевич Никитин¹**

¹Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН
Новосибирск, Россия

²Центр коллективного пользования «Сибирский кольцевой источник фотонов», СКИФ,
Института катализа им. Г. К. Борескова СО РАН
Кольцово, Россия

D.V.Dorokhova@inp.nsk.su

V.L.Dorokhov@inp.nsk.su

S.A.Nikitin@inp.nsk.su

Аннотация

Метод коррекции РСА заключается в глобальном анализе пооборотных данных, полученных с пикапов. Одними из главных его преимуществ является его быстродействие и возможность определения пульсирующих источников питания. Наряду с этим метод РСА отличается широким спектром применения: определение возмущений магнитной структуры ускорителя, расчет элементов транспортной матрицы и оптических функций, а также определение величины поперечной связи. Был написан прототип программы, реализующий предложенный метод, который для экспериментальной апробации тестировался на электрон-позитронном коллайдере ВЭПП-4М. В ходе экспериментов искусственно вводились возмущения в отдельные элементы скью-квадрупольной коррекции. В одном случае возбуждение бетатронных колебаний осуществлялось посредством удара инфлектора, а в другом случае – путем резонансной раскачки пластинами деполяризатора. Было обнаружено, что, несмотря на простоту практической реализации, исследуемый метод имеет некоторые нюансы, которые мешают получению и идентификации верных результатов. Тем не менее удалось выявлять введенные возмущения и даже найти магнит с низкочастотными пульсациями по характерным изменениям рассчитанных инвариантов. Кроме того, была рассмотрена возможность определения интегральных параметров связи колебаний в экспериментах по наблюдению резонансно раскаченных собственных мод, имеющих вид эллипсов в поперечной к оси движения пучка плоскости.

Ключевые слова

бетатронные колебания, коррекция оптики, бетатронная связь, минимизация связи, сингулярные числа, собственные моды, метод главных компонент

Благодарности

Разделы 1 и 2 данной работы выполнены при финансовой поддержке Российского научного фонда правительства Новосибирской области Российской Федерации (Грант РНФ № 22-12-20025 «Развитие методов повышения яркости излучения и апробация диагностик электронного пучка источника СИ 4-го поколения СКИФ»). Раздел 3 выполнен при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания ЦКП СКИФ (проект FWUR-2022-0001).

Для цитирования

Дорохова Д. В., Дорохов В. Л., Никитин С. А. Исследование возможности применения пооборотных измерений для обнаружения возмущений магнитной структуры ускорителей // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 5–19. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-5-19

© Дорохова Д. В., Дорохов В. Л., Никитин С. А., 2023

Investigation of the Possibility of Using Turn-by-Turn Measurements to Detect Perturbations in the Magnetic Structure of Accelerators

Daria V. Dorokhova^{1,2}, Viktor L. Dorokhov^{1,2}
Sergei A. Nikitin¹

¹Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation

²Synchrotron Radiation Facility Siberian Circular Photon Source SKIF,
Boreskov Institute of Catalysis SB RAS
Kol'tsovo, Russian Federation

D.V.Dorokhova@inp.nsk.su

V.L.Dorokhov@inp.nsk.su

S.A.Nikitin@inp.nsk.su

Abstract

The PCA correction method consists of a global analysis of turn-by-turn data obtained from beam position monitors (BPMs). One of its main advantages is speed of operation and the ability to detect pulsating power supplies. Along with this, a wide range of applications characterizes the PCA method: determination of perturbations of the accelerator magnetic structure, calculation of transport matrix elements and optical functions, and determination of the magnitude of the transverse coupling. A software prototype implementing the proposed correction method was written and tested on the electron-positron collider VEPP-4M for experimental validation.

In the experiments, perturbations were introduced one by one into individual elements of the skew-quadrupole and quadrupole corrections. In one case, the excitation of betatron oscillations was carried out by the kick of the inflector. In another case, the oscillations were excited by resonant swing with a depolariser. It was found that, despite the simplicity of practical implementation, the examined method has some nuances that make it difficult to obtain and identify correct results. Nevertheless, it was possible to identify the introduced perturbations of quadrupole and skew-quadrupole corrections. Moreover, it was possible to detect a magnet with low-frequency pulsations by characteristic changes in the estimated invariants. In addition, the possibility of determining the integral coupling parameters in experiments on the observation of resonantly excited eigen modes having the shape of ellipses in the plane transverse to the beam motion axis is considered.

Keywords

betatron oscillations, optic correction, betatron coupling, coupling minimization, singular values, eigen modes, principal component analysis

Acknowledgments

Sections 1 and 2 of this work were supported by the financial support of the Russian Science Foundation of the Government of the Novosibirsk region of the Russian Federation (RSF Grant No. 22-12-20025 "Development of methods for increasing brightness of radiation and testing of diagnostics of the electron beam of the 4th generation SR source SKIF»).

For citation

Dorokhova D. V., Dorokhov V. L., Nikitin S. A. Investigation of the possibility of using turn-by-turn measurements to detect perturbations in the magnetic structure of accelerators. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 5–19. (in Russ). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-5-19

Введение

В современных источниках синхротронного излучения (СИ), таких как строящийся СКИФ, особое внимание уделяется оптимизации параметров, которые определяют качество генерируемого излучения. При запуске бустерного и накопительного колец СКИФ необходимо решить задачу глобальной коррекции оптики – одну из ключевых задач для циклических машин, необходимую для получения расчетных параметров электронного пучка, особенно малого вертикального эмиттansa, так как ультрамалый вертикальный эмиттанс, а соответственно коэффициент бетатронной связи, имеет решающее значение при достижении высокой яркости источника СИ. Для решения данной задачи предполагается использование комбинации не-

скольких методов, одним из которых является PCA [1] – алгоритм определения ошибок оптики ускорителя из пооборотных данных с мониторов положения пучка (пикапов) [2] с применением статистического метода обработки данных. Данный метод предлагается использовать во время первых запусков ускорителя, так как его применение позволяет обнаружить и локализовать существенные возмущения магнитной структуры, в отличие от общеизвестного LOCO, при расчете которым подобные возмущения будут «размазываться» между соседними элементами. Дополнительно использование такого метода позволит фиксировать ошибки в срабатывании пикапов, например, если они начинают измерения с разных оборотов или работают нестабильно. Главным преимуществом PCA является скорость, так как получить пооборотные измерения с пикапов намного проще и быстрее, чем снять матрицу отклика: для сравнения – на ВЭПП-4М снятие матрицы отклика занимает около одного часа, в то время как запись пооборотных измерений – менее одной минуты. Еще одно существенное достоинство метода – возможность определять положение/наличие пульсирующих источников питания в ускорителе. Одновременно с этим исследуемый метод коррекции имеет широкий спектр применения:

1) определение элементов транспортной матрицы между соседними пикапами в реальной структуре ускорителя [2]. Иначе говоря, по изменениям матричных элементов можно точно указать, между какими пикапами находится то или иное возмущение;

2) измерение величины связи колебаний в накопителе через определение того, как изменяются элементы матрицы связи вдоль кольца ускорителя;

3) измерение углов наклона эллипсов собственных мод колебаний и определение отношения их осей для исследования связи по всему кольцу накопителя.

Последнее особенно актуально в приложении СКИФ для подавления величины бетатронной связи для получения проектных параметров установки, особенно ультрамалого эмиттанта.

1. Краткая теория PCA

PCA (метод главных компонент, от англ. Principle Component Analysis) использует сингулярное разложение пооборотных (за несколько сот – тысяч оборотов) пространственно-временных данных о поперечном положении электронного пучка на пикапах при ударном, а также резонансном возмущениях его траектории. Метод рассчитан на выявление участков ускорителя с наиболее сильными возмущениями.

В матрице пооборотных измерений B по столбцам откладываются номера пикапов, а по строкам – номер оборота измерений. Матрицу B можно выразить в форме, которая разделяет временное изменение фазового пространства и отклики пространственной структуры согласно формуле (1), в математической статистике данный метод известен как PCA:

$$B = TP^T. \quad (1)$$

Матрицы в выражении (1), полученные с помощью PCA, согласно [1], связаны с сингулярным разложением соотношениями:

$$B = USL^T; T = US \text{ и } P = L. \quad (2)$$

Подробные выкладки для вывода ниже представленных выражений (3) изложены в [1], поэтому здесь сразу приведем ответ для выражения пространственных и временных мод, полученных из SVD разложения:

$$\begin{aligned}
 UO &= \frac{1}{\sqrt{P}} \begin{pmatrix} \cdots \sqrt{2J_a/\bar{J}_a} \cos(\varphi_a + \psi_a^0) \cdots \\ \cdots -\sqrt{2J_a/\bar{J}_a} \sin(\varphi_a + \psi_a^0) \cdots \\ \cdots \sqrt{2J_b/\bar{J}_b} \cos(\varphi_b + \tilde{\psi}_b^0) \cdots \\ \cdots -\sqrt{2J_b/\bar{J}_b} \sin(\varphi_b + \tilde{\psi}_b^0) \cdots \end{pmatrix}^T; \\
 O^T SL^T &= \begin{pmatrix} \cdots \sqrt{\bar{J}_a \beta_a \gamma} \cos(\psi_a - \psi_a^0) \cdots \\ \cdots \sqrt{\bar{J}_a \beta_a \gamma} \sin(\psi_a - \psi_a^0) \cdots \\ \cdots \sqrt{\bar{J}_b \beta_a c_b} \cos(\psi_b + \Delta\psi_b - \tilde{\psi}_b^0) \cdots \\ \cdots \sqrt{\bar{J}_b \beta_a c_b} \sin(\psi_b + \Delta\psi_b - \tilde{\psi}_b^0) \cdots \end{pmatrix},
 \end{aligned} \tag{3}$$

где UO – временные моды, $\varphi_{a,b}$ – фаза колебаний во времени (от оборота к обороту), $O^T SL^T$ – пространственные моды; $\psi_{a,b} = \int_0^s \frac{ds}{\beta_{a,b}(s)}$ – бетатронная фаза. Матрица O содержит повороты, которые смешивают физический базис в матрице T , определяемой из выражения (1), и приводят к временным векторам в U , содержащим смешанные гармоники колебаний [1]. Важно отметить, что формулы (3) получены для случая возбуждения горизонтальных X колебаний, вертикальные Y моды могут быть получены путем замены в формулах: $x \rightarrow y$ и $a \rightarrow b$.

При выполнении преобразования Фурье по каждому столбцу данных в матрицах обнаруживается доминирующая мода Фурье-спектра на собственной частоте резонансного возбуждения. Каждой моде колебаний соответствуют две степени свободы бетатронного движения для каждого возбуждения (горизонтального и вертикального).

Косинусоподобная орбита представлена действительной частью, а синусоидальная орбита представлена мнимой частью. Следовательно, всего восемь, четыре из X измерений и четыре из Y измерений, линейных независимых мод можно извлечь из двух возбуждений собственных мод [2], которые в дальнейшем используются для определения инвариантов Q_{12} и Q_{34} согласно выражениям (4) [2]:

$$\begin{aligned}
 \frac{x_1^a x_2^b - x_2^a x_1^b}{Q_{12}} + \frac{x_3^a x_4^b - x_4^a x_3^b}{Q_{34}} &= R_{12}^{ab}, \\
 \frac{x_1^a y_2^b - x_2^a y_1^b}{Q_{12}} + \frac{x_3^a y_4^b - x_4^a y_3^b}{Q_{34}} &= R_{32}^{ab}, \\
 \frac{y_1^a x_2^b - y_2^a x_1^b}{Q_{12}} + \frac{y_3^a x_4^b - y_4^a x_3^b}{Q_{34}} &= R_{14}^{ab}, \\
 \frac{y_1^a y_2^b - y_2^a y_1^b}{Q_{12}} + \frac{y_3^a y_4^b - y_4^a y_3^b}{Q_{34}} &= R_{34}^{ab}.
 \end{aligned} \tag{4}$$

Для определения инвариантов Q_{12} и Q_{34} нужно использовать модельные (рассчитанные, например, с помощью MADX) элементы транспортной матрицы. Затем, используя найденные инварианты и четыре независимые пространственные моды, полученные из матрицы истории пучка, определяются экспериментальные элементы транспортной матрицы между соседними пикапами.

2. Эксперименты с РСА

На электрон-позитронном коллайдере ВЭПП-4М проведены первые эксперименты по изучению возможностей сравнительно нового метода по выявлению возмущений в магнитной системе накопителя путем сравнения пространственно-временных характеристик когерентных поперечных колебаний пучка, измеренных с помощью системы пикап-станций на разных азимутах накопительного кольца, с базовыми характеристиками: в одном случае в качестве базы выбиралась теоретическая структура ВЭПП-4М в формате MADX (например, как в разделе 2.1), а в другом базой для расчетов выбиралась структура реального ускорителя в режимах без возмущения. Эксперименты проводились на энергии 1,9 ГэВ.

В одном случае колебания возбуждались импульсным воздействием на пучок и были свободными. Амплитуда колебаний, наблюдаемых по положению центра масс сгустка, уменьшалась в течение нескольких сотен оборотов пучка в накопителе из-за явления декогеренции вследствие имеющегося разброса частот у частиц в пучке (рис. 1). Во втором случае с помощью внешнего переменного электромагнитного поля возбуждались вынужденные колебания в резонансе с одной из двух собственных частот (в идеале одна относится к вертикальным, другая – к горизонтальным колебаниям). Декогеренция в наблюдениях отсутствовала, массив данных увеличился до нескольких тысяч оборотов, что должно повышать точность метода (рис. 2). Вследствие радиационного затухания колебаний (из-за потерь энергии на синхротронное излучение) устанавливается конечное значение их амплитуды.

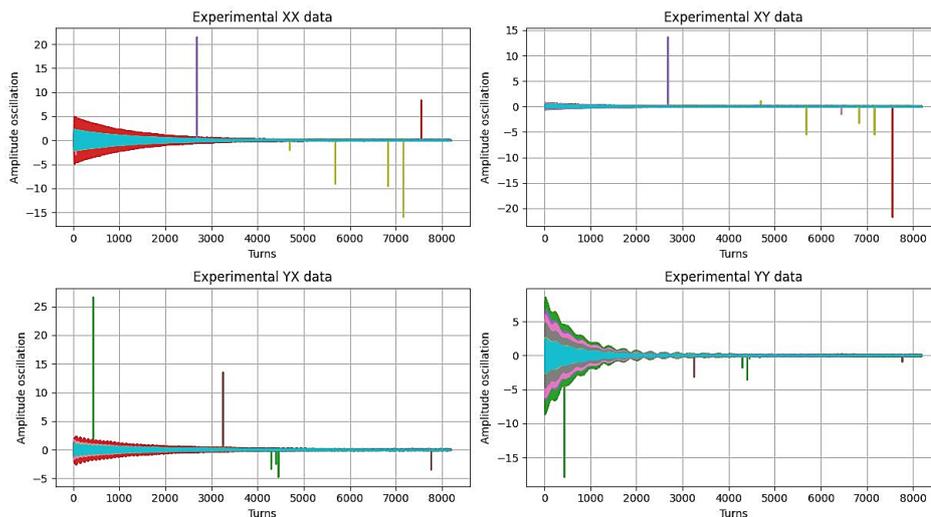


Рис. 1. Пооборотные данные в режиме удара по пучку: XX – горизонтальное положение центра масс пучка при горизонтальном ударе; XY – вертикальное положение при горизонтальном ударе; YX – горизонтальная координата при вертикальном ударе; YY – вертикальная координата при вертикальном ударе. По горизонтальной оси – номер оборота. Изображены данные по всем 52 пикапам. Затухание колебаний вследствие декогеренции происходит примерно за 500 оборотов

Fig. 1. The turn-by-turn data in experiment with kick the beam: XX is a horizontal position of the center of mass of the beam during a horizontal kick. XY is a vertical position of the center of mass of the beam during a horizontal kick. YX is a horizontal position of the center of mass of the beam during a vertical kick. YY is a vertical position of the center of mass of the beam during a vertical kick. Horizontal axis is a number of turn. Data from 52 beam position monitors is shown. The oscillations damping due to decoherence occurs in approximately 500 turns

Смысл экспериментов – протестировать написанный программный скрипт и определить, существуют ли значительные отклонения магнитной структуры коллайдера ВЭПП-4М от иде-

альной модели. А также, искусственно вводя в известные возмущения в структуру реального ускорителя, показать, возможно ли с помощью метода PCA увидеть введенное возмущение.

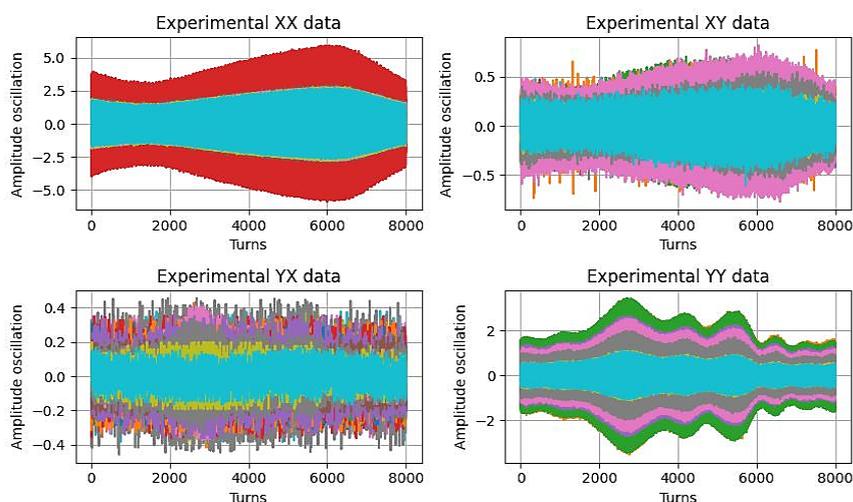


Рис. 2. Пооборотные данные в режиме резонансной раскачки (всего 8000 оборотов). Первая буква в названии данных указывает направление раскачки, которое задается выбором собственной частоты (X или Y), вторая – координату. Неравномерность амплитуд по оборотам, по-видимому, вызвана нестабильностью собственных частот

Fig. 2. The turn-by-turn data in experiment with resonance swing of (in all 8000 turns). The first letter in the name of the data indicates the direction of the swing, which is set by choosing the betatron tune (X or Y); the second letter is the coordinate. The irregularity of the amplitudes over turns is apparently caused by the instability of betatron tune

Для реализации данной цели было проведено два типа экспериментов:

- 1) возбуждение бетатронных колебаний пучка посредством удара инфлектора ВЭПП-4 независимо в вертикальном и горизонтальном направлениях;
- 2) раскачка пучка деполяризатором на частотах, близких к бетатронным.

1.1. Выявление неверно работающих пикапов

В первых экспериментальных заходах в поведении вычисленных инвариантов Q_{12} , Q_{34} и, соответственно, в матричных элементах R_{12} , R_{34} , R_{14} , R_{32} наблюдались значительные отличия реальной структуры от базовой (рис. 3), в качестве которой была выбрана структура ВЭПП-4М в формате MADX.

Выбросы в поведении инвариантов указывают отличия реальной структуры от той, которая взята в качестве базовой. Элементы транспортной матрицы R_{12} , R_{34} на рис. 4 в реальной структуре ВЭПП-4М также показывают сильное отличие реальной структуры от модели в южном полукольце.

В результате обработки экспериментальных данных и проверки всех выдвинутых гипотез о причинах наличия подобных различий идеальной и реальной структур ускорителя было определено, что данные неверно считываются с пикапов.

Было показано, что пикапы в кольце ВЭПП-4М начинают запись пооборотных измерений с разных оборотов: часть начинают работать с 8-го оборота, а часть – с 9-го. Тем не менее, вычисление с учетом этих особенностей показало наличие двух пикапов, первые обороты на которых «скачут» от измерения к измерению. Такое их поведение отражалось на поведении инвариантов и матричных элементов. Таким образом, для более верной идентификации и получения верного результата обнаруженные пикапы были выброшены из рассмотрения.

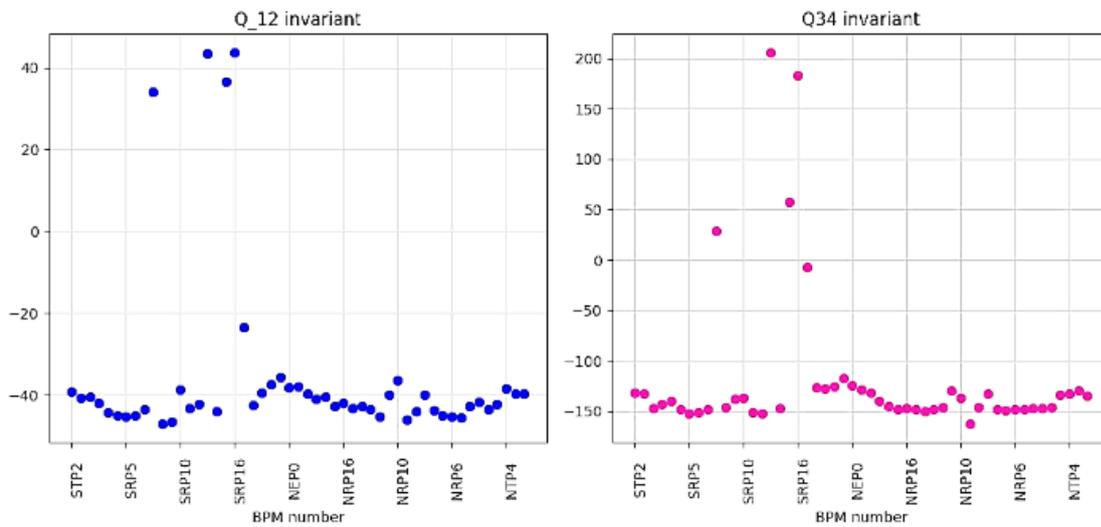


Рис. 3. Поведение инвариантов Q_{12} и Q_{34} в реальной структуре при неверном считывании данных с пикапов
 Fig. 3. The Q_{12} and Q_{34} invariance in the real structure with incorrect data from beam position monitors

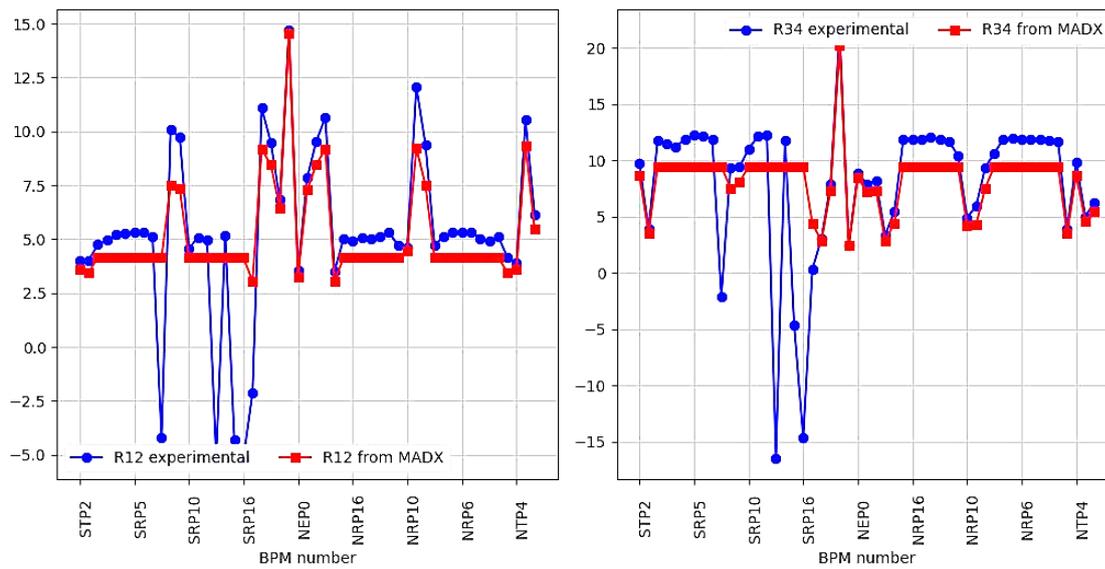


Рис. 4. Элементы транспортной матрицы R_{12} и R_{34} при неверном считывании данных с пикапов: синяя линия – результат, вычисленный из поворотных данных; красная – расчет MADX
 Fig. 4. Elements R_{12} and R_{34} of transport matrix in case of incorrect data from beam position monitors. The blue line is the result calculated from the experimental turn-by-turn data; red line is the MADX model calculation

Инварианты, рассчитанные из обработанных данных с исключенными из рассмотрения пикапов, приведены на рис. 5.

Видно, что после исключения из рассмотрения пикапов с нестабильным первым оборотом ушли выбросы в инвариантах и матричных элементах.

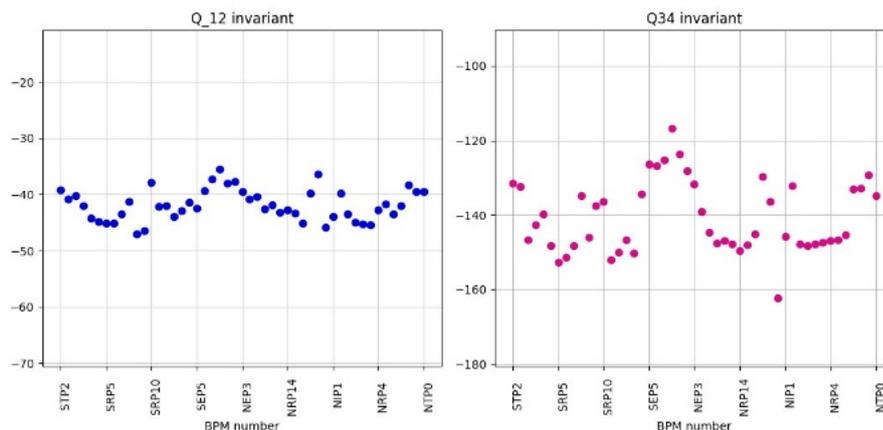


Рис. 5. Поведение инвариантов Q_{12} и Q_{34} в кольце ВЭПП-4М при верном считывании данных с пикапов. По горизонтали – номера и имена пикапов

Fig. 5. The Q_{12} and Q_{34} invariance in the VEPP-4M storage ring with correct data from beam position monitors. The horizontal axis is names and numbers of beam position monitors

Таким образом, метод РСА очень чувствителен: с его помощью можно обнаружить нестабильно срабатывающие пикапы, что не позволяют сделать другие алгоритмы коррекции, подобные LOCO. Также отметим, что данный результат важен для обеспечения верности работы любых систем, для которых важен учет последовательного азимутального распределения колебаний пучка.

1.2. Обнаружение пульсирующего источника питания

При обработке экспериментальных данных было обнаружено: если выбирать в качестве модели для расчета реальную структуру ВЭПП-4М без возмущения, а потом остальные измерения в этом же режиме без возмущения рассчитывать относительно выбранной базы, то в некоторых данных наблюдается выброс в инвариантах между пикапами SEP3 – SEP0 (рис. 6).

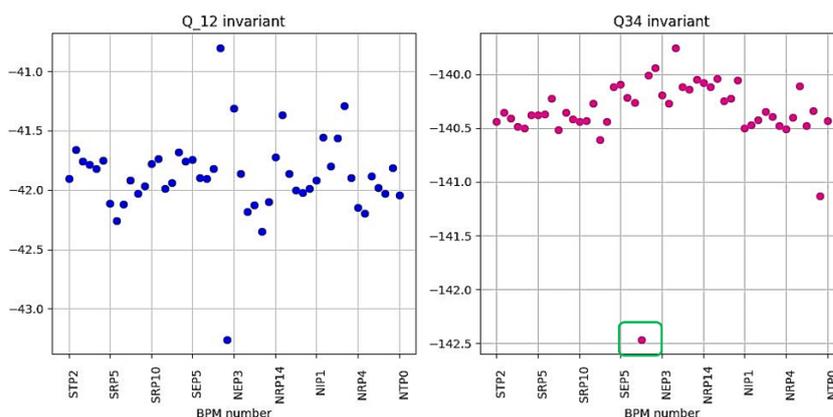


Рис. 6. Инварианты Q_{12} и Q_{34} в измерениях без введенного возмущения, в качестве базы также выбрана структура ВЭПП-4М. Зеленой рамкой отмечен выброс между пикапами SEP3 – SEP0, периодически возникающий в измерениях

Fig. 6. The Q_{12} and Q_{34} invariance in no-disturbance measurements; in these experiments the real VEPP-4M structure is the basic structure. The green frame marks the outlier between SEP3 – SEP0 beam position monitors, which periodically appears in the measurements

Выброс (точка в зеленой рамке на рис. 6) в распределении по кольцу ВЭПП-4М одной из характеристик колебаний, величина которой в идеальном случае не зависит от точки наблюдения (инварианты Q_{12} и Q_{34}), от измерения к измерению мог то появляться, то исчезать. Такое «мерцание» можно объяснить очень низкой частотой обнаруженных пульсаций в источнике питания магнитной линзы, на местоположение которой указало данное измерение (порядка несколько Гц). Само измерение занимает несколько миллисекунд. Проведенные примерно в то же время независимые измерения пульсаций источников питания показали пульсации источника линзы EL2, расположенной в данном месте на частоте порядка 1 Гц.

1.3. Эксперименты по обнаружению искусственно введенного возмущения в структуре ВЭПП-4М

В элемент SEOQ задавалось дополнительное значение тока +2.2 А. Введение тока в SEOQ значительно изменило величину расщепления частот $\Delta\nu$: исходное – 0,0035, с возмущением – 0,021. Цель экспериментов – увидеть с помощью метода РСА введенное возмущение; ожидается, что в инвариантах Q_{12} и Q_{34} будет наблюдаться выброс между пикапами SEP0 – NEP0, между которыми расположен элемент SEOQ.

В качестве базовой структуры выбиралась реальная структура коллайдера ВЭПП-4М в режиме с минимальным расщеплением частот.

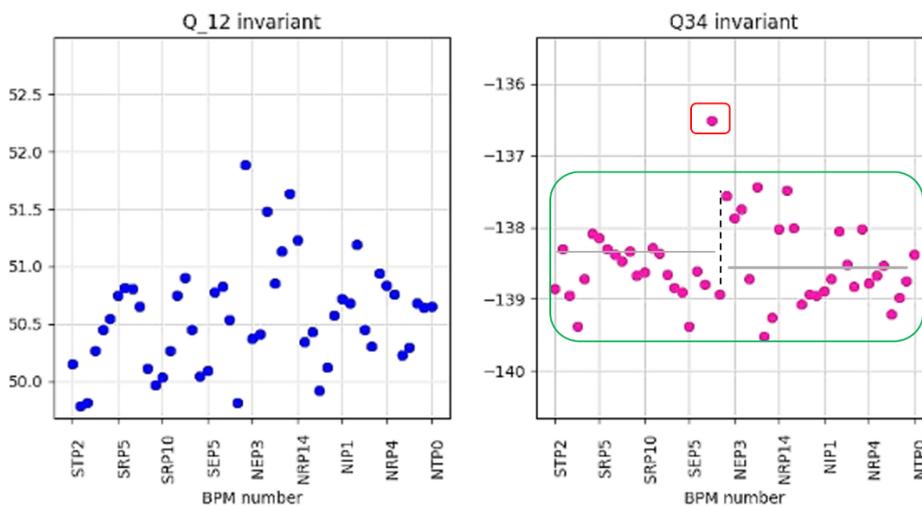


Рис. 7. Поведение инвариантов Q_{12} и Q_{34} с введенным возмущением в элементе SEOQ. Красной рамкой отмечена точка, которая соответствует введенному возмущению; зеленой – общий уровень точек инварианта; черная линия отмечает «скачок» в поведении инварианта
 Fig. 7. The Q_{12} and Q_{34} invariance in experiment with perturbation in the SEOQ element. The red frame marks the point that corresponds to the introduced disturbance. The green frame marks the general level of the invariant points. The black line marks a “jump” in the invariant

На рис. 7 изображены инварианты Q_{12} и Q_{34} в ВЭПП-4М с введенным возмущением в элементе SEOQ. Из графиков ясно видно выбивающуюся из общего уровня точку между пикапами SEP3 – SEP0, которая как раз находится в месте расположения введенного возмущения. Также необходимо отметить факт присутствия небольшой ступеньки: скачка в поведении инвариантов в том месте, где расположено возмущение. Наличие небольшой ступеньки становится очевидным, если отметить на графиках среднее значение инварианта по кольцу, как показано серой линией на рис. 7.

Стоит подчеркнуть, что выброс наблюдается только в инварианте Q_{34} , тогда как в инварианте Q_{12} явного пика не наблюдается. Такое поведение, вероятно, объясняется большим радиальным размером пучка, что может приводить к неточности результатов метода PCA из-за снижения чувствительности пикапов в определении центра тяжести пучка.

Значительные отличия наблюдаются в матричных элементах R_{14} и R_{32} , изображенных на рис. 8, которые возникают при наличии ненулевой связи в кольце ускорителя. Видно, что элементы связи в кольце ВЭПП-4М практически повторяют друг друга за исключением места между пикапами SEP3 – SEP0 в элементе R_{14} . Указанный выброс в матричном элементе R_{14} можно трактовать как результат, соответствующий введенному возмущению, согласно модельным вычислениям, в матричных элементах, отвечающих связи, в месте расположения возмущения, как показано на рис. 9.

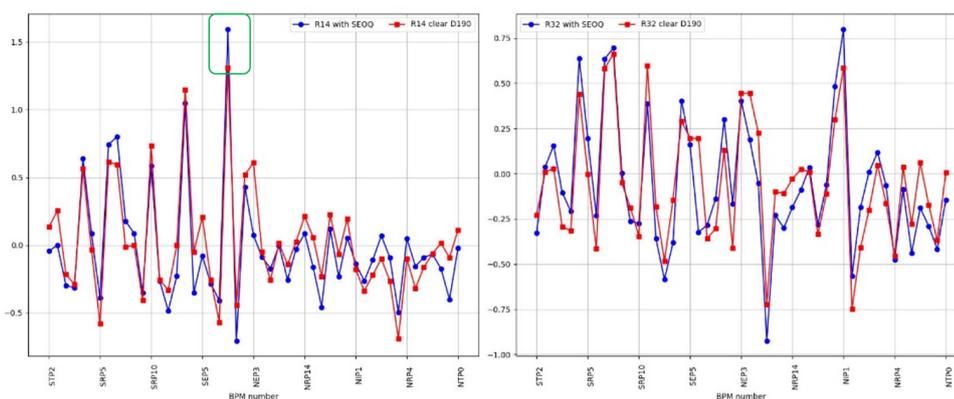


Рис. 8. Матричные элементы R_{14} (слева) и R_{32} (справа). Красная линия – базовый режим; синяя – режим с возмущением в SEOQ; зеленой рамкой выделена точка, которая вполне может соответствовать введенному возмущению в элементе SEOQ

Fig. 8. Matrix elements R_{14} (left plot) and R_{32} (right plot). The red line is the basic real structure; blue line is the real structure with disturbance in SEOQ. The green frame highlights the point that may well correspond to the introduced disturbance in the SEOQ element

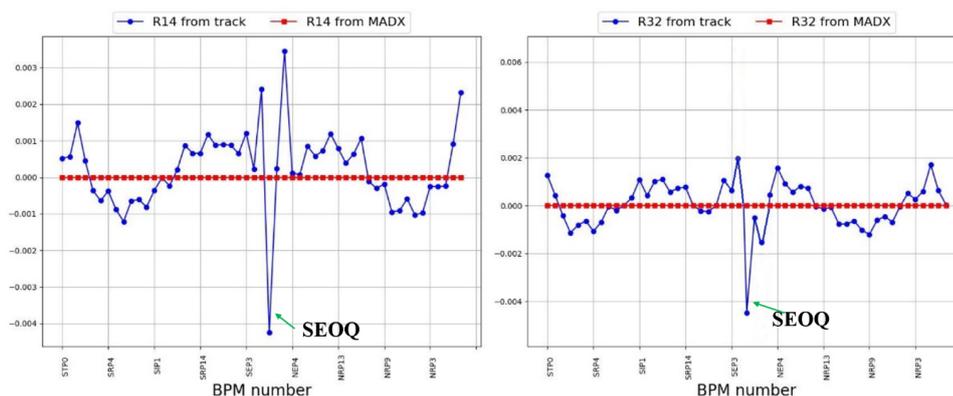


Рис. 9. Матричные элементы R_{14} (слева) и R_{32} (справа) в модельном расчете с возмущением в линзе SEOQ. Красная линия – идеальная структура; синяя – структура с возмущением в SEOQ; стрелкой указано расположение SEOQ, которое совпадает с выбросом в матричных элементах

Fig. 9. Matrix elements R_{14} (left plot) and R_{32} (right plot) in the model calculation with perturbation in the SEOQ element. The red line is the ideal structure; blue line is the structure with disturbance in SEOQ. The arrow indicates the location of SEOQ, which matches with the outlier in the matrix elements

Однако, тем не менее, введенное возмущение мало влияет на изменение матричных элементов в реальном эксперименте. Подобное «замазывание» эффекта, вероятнее всего, можно связать с наличием вклада от других скью-квадрупольных корректоров в кольце ускорителя: т. е., по-видимому, матричные элементы R_{14} и R_{32} отражают интерференцию амплитуды и фазы коэффициента связи.

Также необходимо отметить, что в теоретической структуре ВЭПП-4М не заложены поля детектора КЕДР и компенсирующих соленоидов. Если локальная компенсация не полная, а интегральный эффект связи подавлен скью-квадруполями, то нельзя исключить полученный в эксперименте результат. Добавим, что компенсацию антисолоноидами с ошибкой около 1 % удавалось достигать только с помощью прецизионного измерения сдвига спиновой частоты методом резонансной деполяризации [3].

Эксперименты по исследованию применимости метода РСА проводились в двух вариантах возбуждения колебаний: удар инфлектора ВЭПП-4М и резонансная раскачка деполяризатором, об этом и в том числе о главных отличиях двух методов уже говорилось выше. Мы не будем подробно описывать эксперимент при раскачке колебаний пластинами деполяризатора, только отметим, что в такой вариации эксперимента по применению РСА полученные результаты совпадали с полученными ранее: в поведении инвариантов Q_{12} и Q_{34} наблюдается ступенька в месте расположения возмущения, что согласуется с теоретическими предсказаниями.

В конце раздела, однако, оговорим, что на данном этапе при расчете не учитывались вклады от нелинейных элементов магнитной структуры, т. е. инварианты рассчитывались без учета вклада от секступолей и мультиполей более высокого порядка. Но следует отметить, что даже с такими оговорками метод РСА показывает хорошее согласие с теоретическими предсказаниями.

2. Определение интегральных параметров связи из собственных мод

2.1. Теоретические выкладки

В [4] был предложен метод количественной диагностики линейного разностного резонанса связи колебаний в электрон-позитронном накопителе по углам поворота эллиптических нормальных мод, возбуждаемых резонансной раскачкой. В нем использовано решение [6; 7] уравнений бетатронных колебаний вблизи линейного разностного резонанса $Q_x - Q_y = p + \Delta$.

При резонансной раскачке бетатронных колебаний с помощью пластин деполяризатора возбуждаются собственные моды колебаний, поэтому можно изобразить эллипсы собственных мод напрямую. Эта информация позволяет определить параметры связи поперечных колебаний и поэтому важна для решения задачи минимизации вертикального размера пучка в том числе в строящемся источнике СИ СКИФ.

Такие эллипсы можно экспериментально наблюдать как в случае малой связи ($\Delta\nu_{\text{связи}} = 0,0035$), так и в случае большой связи ($\Delta\nu_{\text{связи}} = 0,021$ при введении скью-квадрупольного градиента в элемент SEOQ). Результаты эксперимента по наблюдению раскачанных собственных мод поперечных колебаний на нескольких азимутах коллайдера ВЭПП-4М в двух случаях представлены на рис. 10.

Центр масс пучка каждой из двух мод от оборота к обороту описывает фигуру, близкую к эллипсу, в плоскости, поперечной к оси движения. Наклоны осей эллипсов и их «округлость» тем более выражены, чем сильнее связь вертикальных и горизонтальных колебаний. Разброс точек может быть вызван изменением амплитуды из-за неустойчивости собственных частот, а также влиянием нелинейности ведущего поля.

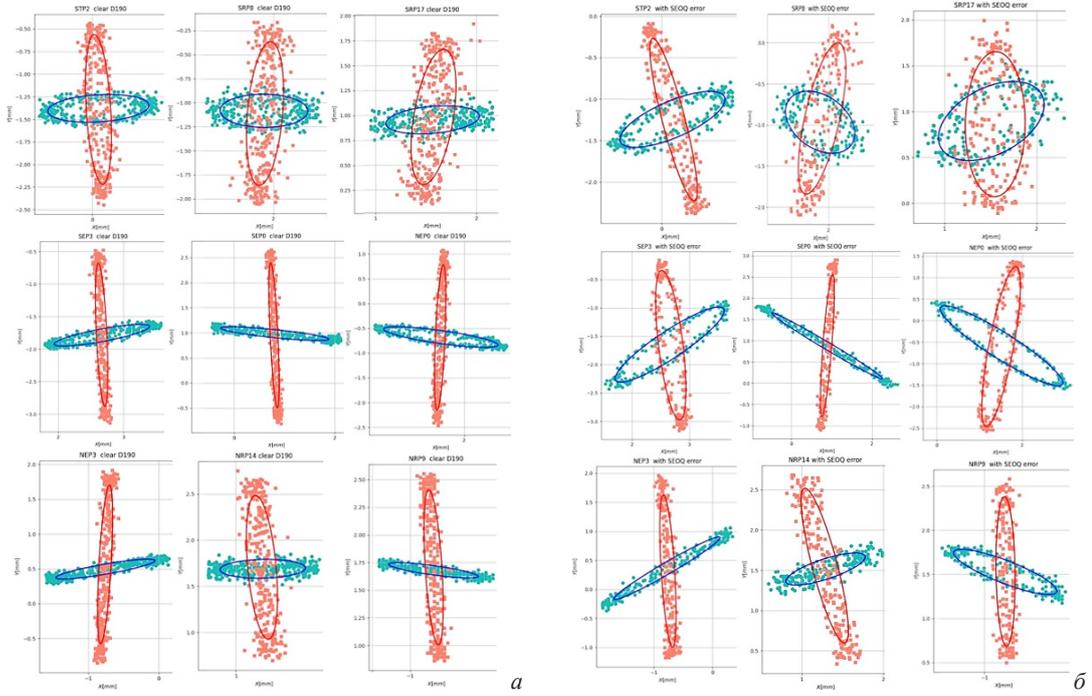


Рис. 10. Раскаченные собственные моды на пикапах: *a* – в режиме без возмущения (красный график – вертикальная мода, зеленый – горизонтальная); *b* – в режиме со скью-квадрольным возмущением в SEOQ (красный график – вертикальная мода, зеленый – горизонтальная)
 Fig. 10. Swing of eigen mods on beam position monitors: *a* – in no-disturbance experiment (the red graph is the vertical mode; the green graph is the horizontal mode); *b* – in experiment with skew-quadrupole error (the red graph is the vertical mode; the green graph is the horizontal mode)

Используя углы поворота нормальных мод, можно определить коэффициент связи. Пусть наблюдение раскаченных мод дало значения углов их наклона Ψ_+ и Ψ_- , а также значения частот нормальных мод Q_1 и Q_2 , нецелые части которых составляют ν_1 и ν_2 . Введем обозначения:

$$\varepsilon = \frac{\tan 2\Psi_+}{\tan 2\Psi_-} \text{ и } F = \frac{\beta_y}{\beta_x}, \quad (5)$$

здесь функции $\beta_{x,y}$ соответствуют азимуту, на котором происходит наблюдение поперечного профиля пучка. Используя введенные обозначения (5), получаем выражение для невозмущенной разности частот по данным наблюдения профиля пучка:

$$\Delta = (\nu_1 - \nu_2) \frac{(1+\varepsilon)(1-F)}{(1-\varepsilon)(1+F)}. \quad (6)$$

После нахождения Δ определяем модуль коэффициента связи:

$$k = \frac{1}{2} \sqrt{(\nu_1 - \nu_2)^2 - \Delta^2}. \quad (7)$$

Более того, также имеется возможность определять и фазу комплексного параметра бетатронной связи по величине угла наклона каждой из мод по выражениям:

$$\delta_k = \chi_x - \chi_y - \cos^{-1} \left\{ \frac{1}{4k\sqrt{F}} [(1-F)(\nu_1 - \nu_2) + (1+F)\Delta] \tan 2\Psi_+ \right\} \quad (8)$$

и

$$\delta_k = \chi_x - \chi_y - \cos^{-1} \left\{ \frac{1}{4k\sqrt{F}} [(1-F)(\nu_2 - \nu_1) + (1+F)\Delta] \tan 2\Psi_- \right\}, \quad (9)$$

здесь $\chi_{x,y}$ – фаза функции Флоке [5] при азимуте, на котором происходит наблюдение поперечного профиля пучка. Так как (8) и (9) в идеальном случае должны давать одно и то же значение, их сравнение в эксперименте будет проверкой степени применимости методики в целом.

2.2. Эксперимент по определению интегральных параметров связи

Как уже упоминалось, в экспериментах по исследованию метода РСА на электрон-позитронном коллайдере ВЭПП-4М возбуждение колебаний производилось посредством раскачки деполяризатором. Напомним, что для проведения соответствующих экспериментов создавался режим работы с минимальным расщеплением бетатронных частот ($Q_x = 0,54, Q_y = 0,58$), затем в созданном режиме задавалось дополнительное значение тока +2,2 А в элемент SEOQ ($Q_x = 0,537, Q_y = 0,583$). Это, в свою очередь, привело к возбуждению сильной бетатронной связи.

Значения параметров связи, определенные из углов наклона собственных мод
 Values of coupling parameters determined from the inclination angles of eigen modes

Параметр	Режим без возмущения	Режим с возмущением в SEOQ
Измеренный $\Delta\nu_{\text{связи}}$	0,0035	0,021
Рассчитанный $\Delta\nu_{\text{связи}}$	$0,009 \pm 0,038$ для доверительного интервала $P = 95 \%$	$0,022 \pm 0,005$ для доверительного интервала $P = 95 \%$

В эксперименте модуль комплексного коэффициента связи k измерялся путем сведения бетатронных частот. Затем по формуле (7) с учетом выражений (5) и (6) были рассчитаны значения модулей коэффициента связи k , усредненный по всем пикапам. Полученные значения сравнивались с измеренными в полученных режимах работы. Результаты приведены в таблице. Как видно, наблюдается несоответствие для малой величины бетатронной связи, что можно связать с ошибками в ориентации осей пикапов на некоторый угол $\frac{\alpha}{2}$ (в самом простом приближении возможно предположить, что оси пикапов по горизонтали и вертикали смещены на один и тот же угол), так как эта ошибка коррелируется с вычисленной ошибкой в модуле связи из неточности углов поворота эллипсов; что вносит ошибку в определение параметра ε как

$$\frac{d\varepsilon}{\varepsilon} = \alpha \left(\frac{\tan 2\psi_- - \tan 2\psi_+}{\tan 2\psi_- \tan 2\psi_+} \right). \tag{10}$$

Из этого следует, что даже малые ошибки в определении угла наклона мод дают большие отклонения в определении Δ и, следовательно, параметра k .

По предварительным оценкам, модуль ошибки угловой выставки всех пикапов лежат в диапазоне: $0^\circ < \left| \frac{\alpha}{2} \right| < 12^\circ$. Таким образом, предварительно имеется верхняя граница на величину выставки угла пикапов. Тем не менее для последующего развития метода и его уточнения необходим более подробный анализ расположения электродов пикапов и их геометрии (некоторые пикапы в полукольцах имеют непрямую геометрию расположения электродов) [8] и тщательное вычисление ошибок углов наклона эллипсов собственных мод.

Заключение

В первых экспериментах по исследованию метода РСА искусственно поочередно вводились возмущения в элементы структуры в двух вариантах экспериментов: возбуждение бета-

тронных колебаний посредством удара инфлектора и раскачки пластинами деполяризатора. Отличие двух вариантов возбуждения колебаний состоит в том, что в первом ограничено количество оборотов из-за эффекта декогеренции, в то время как во втором варианте такой эффект отсутствует, что позволяет в расчете использовать максимальное количество записываемых оборотов.

Посредством используемого метода было определено, что в ВЭПП-4М пикапы начинают запись пооборотных измерений с разных оборотов: часть пишет с девятого оборота, а часть – с восьмого. Также были определены два нестабильно работающих пикапа: номер первого оборота, на которых скачет от измерения к измерению. Указанный результат важен для обеспечения корректной работы любых систем, для которых необходим учет последовательного азимутального распределения колебаний пучка. По результатам экспериментов показано, что реальная структура коллайдера ВЭПП-4М находится в неплохом согласии с моделью.

Также в результате экспериментов удалось наблюдать введенные возмущения в выбранных элементах по распределению вдоль кольца ВЭПП-4М одной из характеристик колебаний, величина которой в идеальном случае не зависит от точки наблюдения (инварианты Q_{12} и Q_{34}). Вместе с тем получилось обнаружить низкочастотные пульсации (порядка нескольких Гц) в источнике питания магнитной линзы, что также было подтверждено непосредственным измерением пульсаций источника линзы, проводимыми в то же время.

Помимо того, показано, что, измерив с помощью резонансной раскачки посредством пластин деполяризатора частоты и углы наклона нормальных мод по СИ-образу пучка, а также используя расчетные данные о невозмущенных значениях структурных функций, можно определить реальную и мнимую часть комплексного коэффициента связи.

Список литературы

1. **Chun-xi Wang** Untangling mixed modes in model-independent analysis of beam dynamics in circular accelerators // *Phys. Rev. Accel. Beams*. 2004. Vol. 7. P. 114001. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevSTAB.7.114001>
2. **Yan Y. T., Cai Y., Irwin J., and Sullivan M.** Linear Optics Verification for PEP-II using Model-Independent Analysis // Presented at the 23rd Advanced ICFA Beam Dynamics Workshop on High Luminosity e+e- Colliders, 10/15/2001-10/19/2001, Ithaca, NY, SLAC-PUB-9368.
3. **Nikitin S. A.** Influence of errors in KEDR detector field compensation on the spin tune shift and the beam polarization lifetime in VEPP-4M collider at energy of tau lepton production threshold // *RuPAC*. Новосибирск, 2006.
4. **Никитин С. А.** Диагностика линейной связи колебаний и схема ее компенсации на ВЭПП-4 // *Работы молодых специалистов, выполненных в ИЯФ СО АН СССР в 1978–1979 годах*. Новосибирск, 1979.
5. **Коломенский А. А., Лебедев А. Н.** Теория циклических ускорителей. М.: Физматлит, 1962.
6. **Bryant P. J., et al.** Methods for measuring the complex coupling coefficient for the second order difference resonance $Q_h - Q_v = 0$ // *CERN ISR-MA/ 75-42*.
7. **Guignard G.** The general theory of all sum and difference resonances in a three-dimensional magnetic field in a synchrotron // *CERN 76-06*.
8. **Bekhtenev E., Karpov G., Leshenok D., Nikitin S., Plotnikova O.** Observation of Saw-Tooth effect orbit at VEPP-4M collider // *IPAC'18*, 29 апреля – 4 мая, 2018, Ванкувер, Канада, Slides FRXGBD4. DOI: <https://DOI.org/10.18429/JACoW-IPAC2018-FRXGBD4>

References

1. **Chun-xi Wang** Untangling mixed modes in model-independent analysis of beam dynamics in circular accelerators. *Phys. Rev. Accel. Beams*, 2004, vol. 7, p. 114001. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevSTAB.7.114001>
2. **Yan Y. T., Cai Y., Irwin J., and Sullivan M.** Linear Optics Verification for PEP-II using Model-Independent Analysis. *Presented at the 23rd Advanced ICFA Beam Dynamics Workshop on High Luminosity e+e- Colliders, 10/15/2001-10/19/2001, Ithaca, NY, SLAC-PUB-9368.*
3. **Nikitin S. A.** Influence of errors in KEDR detector field compensation on the spin tune shift and the beam polarization lifetime in VEPP-4M collider at energy of tau lepton production threshold. *Presented of RuPAC September 10–14, 2006, Novosibirsk, Russia.*
4. **Nikitin S. A.** Diagnostics of linear coupling of oscillations and the scheme of its compensation on VEPP-4. In: *Works of young specialists, performed in INPP SB AS USSR in 1978-1979, INPP SB AS USSR.* Novosibirsk, 1979 (in Russ.)
5. **Kolomenskiy A. A., Lebedev A. N.** Theory of cyclic accelerations. Moscow, Phisimatlit, 1962.
6. **Bryant P. J. et al.** Methods for measuring the complex coupling coefficient for the second order difference resonance $Q_h - Q_v = 0$. *CERN ISR-MA/ 75-42.*
7. **Guignard G.** The general theory of all sum and difference resonances in a three-dimensional magnetic field in a synchrotron. *CERN 76-06.*
8. **Bekhtenev E., Karpov G., Leshenok D., Nikitin S., Plotnikova O.** Observation of Saw-Tooth effect orbit at VEPP-4M collider. *The 9th International Particle Accelerator Conference, April 29 – May 4, 2018, Vancouver, Canada, Slides FRXGBD4.* DOI: <https://doi.org/10.18429/JACoW-IPAC2018-FRXGBD4>

Информация об авторах

Дорохова Дарья Вячеславовна, младший научный сотрудник

Дорохов Виктор Леонидович, кандидат технических наук

Никитин Сергей Алексеевич, доктор физико-математических наук

Information about the Authors

Daria V. Dorokhova, Junior Researcher

Viktor L. Dorokhov, Candidate of Technical Sciences

Sergei A. Nikitin, Doctor of Physical and Mathematical Sciences

*Статья поступила в редакцию 10.10.2023;
одобрена после рецензирования 13.11.2023; принята к публикации 16.11.2023*
*The article was submitted 10.10.2023;
approved after reviewing 13.11.2023; accepted for publication on 16.11.2023*

Научная статья

УДК 537.63

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-20-30

Дипольные магниты с однородным полем проекта СКИФ

Ксения Константиновна Рябченко¹,
Александр Анатольевич Старостенко²

Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН
Новосибирск, Россия

¹K.K.Ryabchenko@inp.nsk.su

²A.A.Starostenko@inp.nsk.su

Аннотация

В статье приведены результаты расчетов C-образных дипольных магнитов, которые будут располагаться в накопителе СКИФа, а также четырех горизонтальных дипольных магнитов для транспортного канала от ЛИНАКа к бустеру и трех дипольных магнитов для канала от бустера до накопителя. Требуемое качество поля в интегральном смысле для рассматриваемых диполей должно быть не хуже, чем 5×10^{-4} .

Ключевые слова

дипольные магниты, СКИФ, интегральное качество поля, накопитель, транспортный канал

Для цитирования

Рябченко К. К., Старостенко А. А. Дипольные магниты с однородным полем проекта СКИФ // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 20–30. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-20-30

Dipole Magnets with a Homogeneous Field of the SKIF

Kseniia K. Riabchenko¹, Aleksandr A. Starostenko²

Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS Novosibirsk,
Russian Federation

¹K.K.Ryabchenko@inp.nsk.su

²A.A.Starostenko@inp.nsk.su

Abstract

This article presents the results of calculations of C-designed dipole magnets that will be located in the SKIF storage device, four horizontal dipole magnets for the transport channel from LINAC to the booster and three dipole magnets for the channel from the booster to the storage device. The required field quality in the integral sense for the dipoles should be no worse than 5×10^{-4} .

Keywords

dipole magnets, SKIF, integral field quality, storage device, transport channel

For citation

Riabchenko K. K., Starostenko A. A. Dipole magnets with a homogeneous field of the SKIF. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 20–30 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-20-30

© Рябченко К. К., Старостенко А. А., 2023

ISSN 2541-9447

Сибирский физический журнал. 2023. Том 18, № 3

Siberian Journal of Physics, 2023, vol. 18, no. 3

Введение

В 2019 г. началась активная работа по проектированию серий магнитных элементов для синхротронного источника СКИФ (Сибирский кольцевой источник фотонов). СКИФ – это источник синхротронного излучения четвертого поколения. Данная установка будет состоять из трех основных частей: линейного ускорителя на энергию 200 МэВ; бустера – синхротрона с максимальной энергией 3 ГэВ и длиной орбиты 158 м; накопительного кольца с 16-кратной симметрией, энергией 3 ГэВ и периметром в 476 м. В рамках данного проекта для накопительного кольца СКИФа проводились разработка и изготовление С-образных дипольных магнитов, которые будут располагаться в прямолинейных промежутках кольца с большой β_x . Требуемое качество поля в интегральном смысле для рассматриваемых диполей должно быть не хуже, чем 5×10^{-4} . Кроме этого, на стадии изготовления находятся четыре горизонтальных дипольных магнита для транспортного канала от ЛИНАКа к бустеру, а также три дипольных магнита для канала от бустера до накопителя.

1. Дипольные магниты накопительного кольца (ВМА)

Рассматриваемые дипольные С-образные магниты будут располагаться в прямолинейных промежутках кольца с большой β_x . Компонировка подобной секции подавления дисперсии показана на рис. 1: она состоит из квадрупольных линз с эффективными длинами $L = 0,3$ м и $0,15$ м, и градиентами G в диапазоне $-45 \div 52$ Тл/м, а также из дипольных С-образных магнитов с эффективной длиной $L = 0,69$ м, магнитным полем в центре B около $0,5$ Тл.



Рис. 1. Компонировка секции подавления дисперсии
Fig. 1. Dispersion suppression section layout

Основные требования к магнитным элементам данного типа показаны в табл. 1.

Таблица 1

Базовые требования к диполям ВМА

Table 1

Basic requirements for ВМА dipoles

Параметр	Единица измерения	Значение
1	2	3
Магнитная длина	м	0,69
Апертура магнита	мм	Ø 30
Поле в зазоре	Тл	0,53

Окончание табл. 1

1	2	3
Градиент	Тл/м	0
Максимальный интеграл поля	Тл × м	0,363
$\Delta B/B$ ($R = 10$ мм)	%	$\pm 0,08$
Качество поля		$\leq 5 \times 10^{-4}$
Область хорошего поля	мм ²	10×10
Количество	шт.	32

В табл. 2 показаны величины полученных интегральных гармоник на радиусе 10 мм для варианта с геометрией, показанной на рис. 3.

Таблица 2

Величины интегральных гармоник на $R = 10$ мм

Table 2

Values of integral harmonics at $R = 10$ мм

Номер интегральной гармоники	Величина интегральной гармоники
2	$-1,9 \times 10^{-4}$
3	$-1,37 \times 10^{-4}$
4	$1,43 \times 10^{-5}$
5	$-3,74 \times 10^{-6}$
6	$-3,52 \times 10^{-6}$

3D-модель, полученная в ходе ряда оптимизаций, показана на рис. 2.

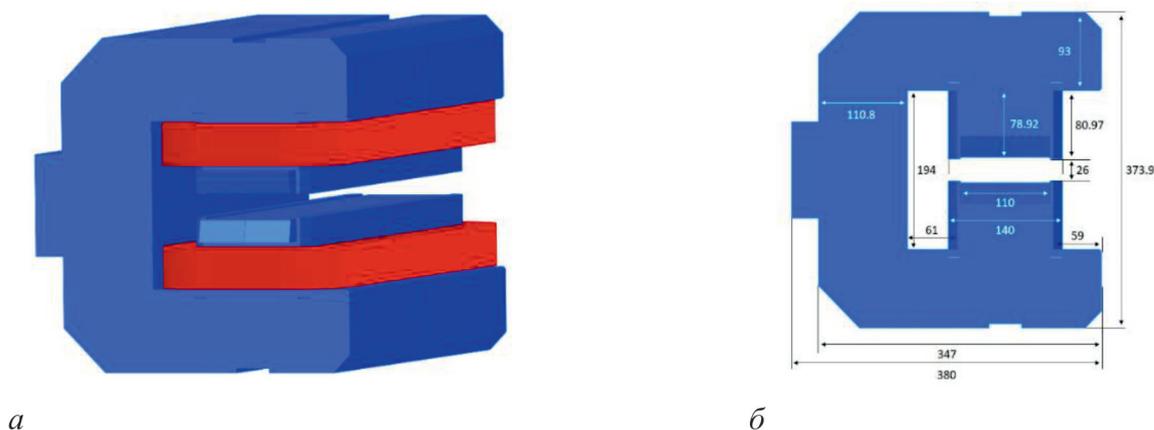


Рис. 2. 3D-модель дипольного магнита с выдвижными шимами (две фаски под разными углами для выравнивания интегрального качества поля), высота накладки 25 мм (а). Основные габариты диполя (в мм) (б)

Fig. 2. 3D model of a dipole magnet with retractable shims (two chamfers at different angles to equalize the integral field quality), cover height 25 mm (a). Main dimensions of the dipole (in mm) (b)

На рис. 3 показана конструкторская модель.

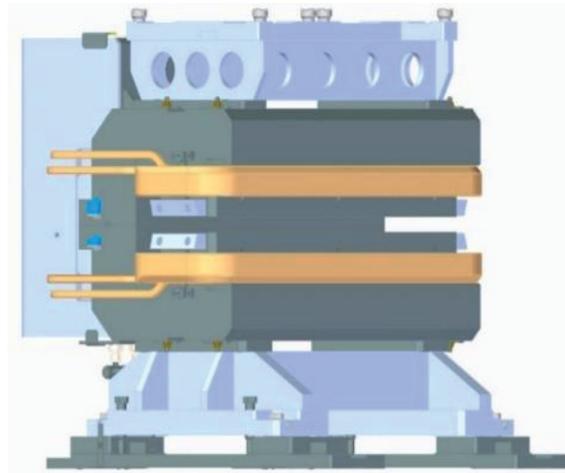


Рис. 3. Конструкторская модель диполя ВМА
Fig. 3. Design model of the BMA dipole

В табл. 3 показаны полученные параметры дипольного магнита ВМА при расчетах конструкторской модели в Opera.

Таблица 3

Параметры, полученные в ходе оптимизации
конструкторской 3D-модели диполя

Table 3

Parameters obtained during optimization of the 3D dipole design model

Параметр	Единица измерения	Значение
Длина магнитопровода	м	0,618
Длина по железу с накладками	м	0,666
Эффективная длина	м	0,695
Радиус поворота	м	19
Длина с катушками	м	0,689
Поле в зазоре	Тл	0,522
$\Delta B/B$ (по окружности $R = 10$ мм)		$3,73 \times 10^{-4}$
Интеграл	Тл \times м	0,363
Ток	ампер \times витки	6335
Максимальное значение плотности тока	А/мм ²	3,9
Толщина обмотки	мм	47
Ширина обмотки	мм	35,3

На этапе конструирования важную роль играет анализ и определение системы охлаждения магнитного элемента, для чего необходимы такие параметры, полученные в ходе разработки магнита, как ток, размер медного проводника, мощность.

В табл. 4 представлены расчетные параметры охлаждения для дипольного магнита ВМА (тип теплоносителя – вода).

Таблица 4

Параметры системы охлаждения диполя ВМА

Table 4

Parameters of the ВМА dipole cooling system

Параметр	Единица измерения	Значение
Ток номинальный	А	430
Сечение шины	мм	$1,7 \times 8,0 - \varnothing 5,8$
Площадь канала охлаждения	мм ²	26,42
Площадь сечения	мм ²	58,32
Длина обмотки	м	26,1
Сопротивление обмотки при 20 °С	мОм	7,7
Номинальное напряжение на обмотке	В	3,3
Номинальная мощность потерь на обмотке	Вт	1427
Параметры системы охлаждения		
Количество подключенных последовательно катушек	шт.	1
Температура воды на входе	°С	21
Диапазон нагрева воды	°С	4,2
Перепад давления в системе охлаждения	атм	6
Скорость воды в канале охлаждения	м/с	3
Расход воды в ветви	л/мин	4,4

2. Дипольные магниты транспортного канала от линака до бустера (DIP)

Канал от линака до бустера предназначен для транспортировки пучков электронов энергией 200 МэВ и согласования параметров впускаемого пучка с оптикой бустера (рис. 4). Канал состоит из четырех горизонтальных дипольных магнитов: два магнита с углом поворота 225 мрад и еще два с углом поворота 162,5 мрад; 14 квадрупольных линз; 2 горизонтальных и 2 вертикальных корректора.

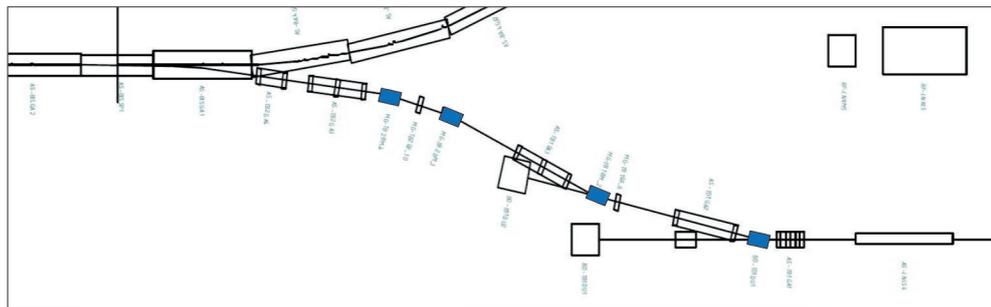


Рис. 4. Схема транспортного канала от линака до бустера
Fig. 4. Scheme of the transport channel from the linac to the booster

Основные требования к магнитным элементам показаны в табл. 5.

Таблица 5

Базовые требования к дипольным магнитам типа DIP

Table 5

Basic requirements for dipole magnets DIP

Параметр	Единица измерения	DIP1-DIP2	DIP3-DIP4
Магнитная длина	м	0,35	
Апертура магнита	мм	Ø 50	
Поле в зазоре	Тл	0,429	-0,310
Угол поворота	мрад	225	162,5
Максимальный интеграл поля	Тл × мм	0,18	
$\Delta B/B$ ($R = 10$ мм)	%	±0,08	
Качество поля		$\leq 5 \times 10^{-4}$	
Область хорошего поля	мм ²	20 × 20	
Количество	шт.	2	2

В ходе моделирования был получен профиль полюса с двумя шимами, торцевой фаской и сквозным круглым отверстием диаметром 25 мм, которое позволяет скорректировать величины интегральных гармоник (рис. 5). Также были оценены величины интегральных гармоник на окружности радиусом 10 мм. В табл. 6 приведены величины полученных интегральных гармоник. На рис. 6 показана конструкторская модель.

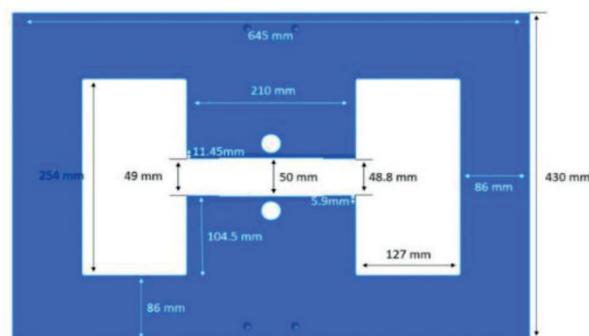


Рис. 5. Профиль полюса дипольного магнита DIP (длина по Z – 300 мм).

Диаметр сквозного отверстия в полюсе – 25 мм, расстояние от верхней точки отверстия до плоскости полюса – 6 мм

Fig. 5. Profile of the pole of a DIP dipole magnet (Z length: 300 mm).

The diameter of the through hole in the pole is 25 mm, the distance from the top point of the hole to the plane of the pole is 6 mm

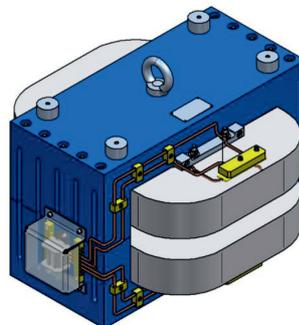


Рис. 6. Конструкторская модель диполей типа DIP

Fig. 6. Design model of DIP type dipoles

Таблица 6

Величины интегральных гармоник

Table 6

Integral harmonic values

Номер интегральной гармоник	Величина интегральной гармоник	
	DIP1-DIP2	DIP3-DIP4
2	$-3,07 \times 10^{-3}$	$-2,19 \times 10^{-3}$
3	$-4,36 \times 10^{-5}$	$-3,98 \times 10^{-5}$
4	$-1,15 \times 10^{-5}$	$-1,03 \times 10^{-5}$
5	$-7,35 \times 10^{-7}$	$-1,27 \times 10^{-6}$
6	$8,98 \times 10^{-7}$	$-7,67 \times 10^{-7}$

В табл. 7 показаны полученные параметры дипольного магнита, а также параметры катушки.

Таблица 7

Параметры, полученные для 3D-моделей дипольных магнитов
транспортного канала линак-бустер

Table 7

Parameters obtained for 3D models of dipole magnets
of the linac-booster transport channel

Параметр	Единица измерения	DIP1-DIP2	DIP3-DIP4
Длина магнитопровода	м	0,3	
Эффективная длина	м	0,371	
Радиус поворота	м	1,56	2,15
Длина с катушками	м	0,55	
Поле в зазоре	Тл	0,404	-0,294
$\Delta B/B$ (по окружности $R = 10$ мм)		$7,39 \times 10^{-4}$	$4,34 \times 10^{-4}$
Интеграл	Тл \times м	0,151	-0,109
Ток	ампер \times витки	6052	8332
Максимальное значение плотности тока	А/мм ²	0,5	0,7
Толщина обмотки	мм	95	
Ширина обмотки	мм	127	

3. Дипольные магниты транспортного канала от бустера до синхротрона (ВМ)

Канал от бустера до синхротрона предназначен для транспортировки пучков электронов энергией 3 ГэВ и согласования параметров впускаемого и циркулирующего в синхротроне пучков (рис. 7, 8).

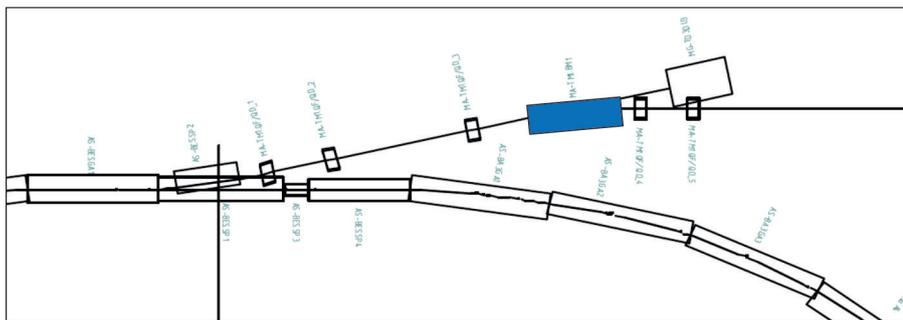


Рис. 7. Схема выпуска из бустера
Fig. 7. Booster release diagram

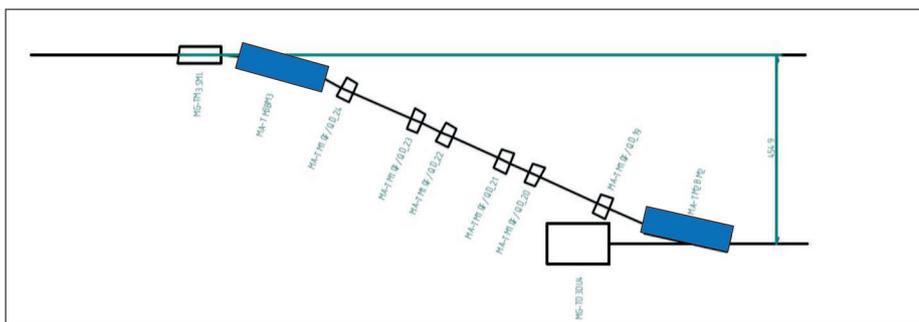


Рис. 8. Схема участка подъема из тоннеля в зал накопителя
Fig. 8. Diagram of the ascent section from the tunnel to the storage chamber

Канал состоит из 3 дипольных магнитов: одного горизонтального дипольного магнита с углом поворота 161 мрад; двух вертикальных поворотных магнитов с углами поворота 126,64 мрад; 24 квадрупольных линз; 4 горизонтальных и 4 вертикальных корректора.

Основные требования к магнитным элементам показаны в табл. 8.

Таблица 8

Базовые требования к дипольным магнитам типа ВМ

Table 8

Basic requirements for dipole magnets BM

Параметр	Единица измерения	BM1	BM2-BM3
Магнитная длина	м	1,1	
Апертура магнита	мм	Ø 30	
Поле в зазоре	Тл	1,442	-1,152
Угол поворота	мрад	158,5	126,64
Максимальный интеграл поля	Тл × мм	0,18	
Качество поля		$\leq 5 \times 10^{-4}$	
Область хорошего поля	мм ²	20 × 20	
Количество	шт.	1	2

Величины интегральных гармоник на окружности радиусом 10 мм показаны в табл. 9.

Таблица 9

Величины интегральных гармоник

Table 9

Values of integral harmonics

Номер интегральной гармоники	Величина интегральной гармоники	
	BM1	BM2-BM3
2	$-7,06 \times 10^{-4}$	$-5,47 \times 10^{-4}$
3	$1,53 \times 10^{-5}$	$9,96 \times 10^{-5}$
4	$4,01 \times 10^{-6}$	$-3,97 \times 10^{-7}$
5	$-2,00 \times 10^{-6}$	$-3,41 \times 10^{-5}$
6	$-3,66 \times 10^{-6}$	$1,94 \times 10^{-6}$

3D-модель дипольного магнита, полученная в ходе ряда оптимизаций, показана на рис. 9.

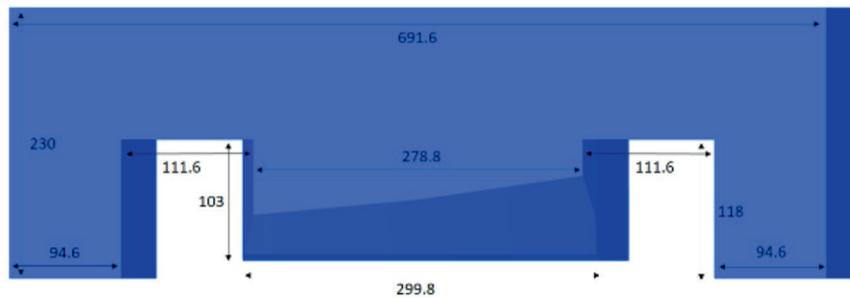


Рис. 9. 3D-модель дипольного магнита с основными габаритами. Размеры указаны в мм

Fig. 9. 3D model of a dipole magnet with main dimensions. Dimensions in mm

В табл. 10 показаны полученные параметры магнитов типа BM, а также необходимые параметры катушки.

Таблица 10

Параметры, полученные в ходе оптимизации
3D-модели дипольных магнитов BM

Table 10

Parameters obtained during optimization of the 3D model of BM dipole magnets

Параметр	Единица измерения	BM1	BM2-BM3
Длина магнитопровода	м	1,12 и 1,07	
Эффективная длина	м	1,1	
Радиус поворота	м	6,93	8,68
Длина с катушками	м	1,3	
Поле в зазоре	Тл	1,412	1,135
$\Delta B/B$ (по окружности $R = 10$ мм)		$1,22 \times 10^{-4}$	$4,08 \times 10^{-4}$
Интеграл	Тл \times м	0,156	0,127
Ток	ампер \times витки	32 000	18 700
Максимальное значение плотности тока	А/мм ²	4,2	2,45
Толщина обмотки	мм	82	
Ширина обмотки	мм	93	

На рис. 10 показана конструкторская модель дипольных магнитов типа ВМ1.

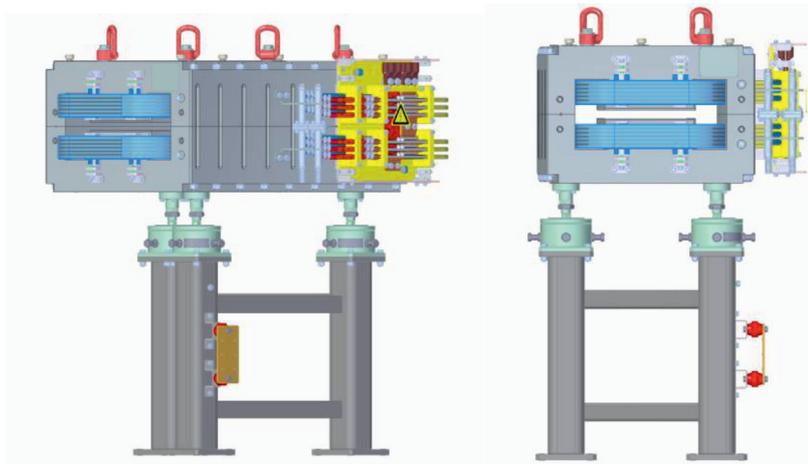


Рис. 10. Конструкторская модель дипольного магнита ВМ1
Fig. 10. Design model of dipole magnet ВМ1

В табл. 11 показаны параметры системы охлаждения для диполей ВМ1 и ВМ2-ВМ3 (тип теплоносителя – вода).

Таблица 11

Параметры системы охлаждения дипольных магнитов
транспортного канала бустер–накопитель

Table 11

Parameters of the cooling system for dipole magnets
of the booster-storage transport channel

Параметр	Единица измерения	ВМ1	ВМ2-ВМ3
Ток номинальный	А	762,5	445
Сечение шины	мм	12 × 12 – Ø6	
Площадь канала охлаждения	мм ²	0,942	
Площадь сечения	мм ²	2,8 × 10 ⁻⁵	
Длина обмотки	м	50	
Сопротивление обмотки при 20 °С	МОм	7,5	7,5
Номинальное напряжение на обмотке	В	5,7	3,3
Номинальная мощность потерь на обмотке	Вт	4363	1486
Параметры системы охлаждения			
Количество подключенных последовательно катушек	шт.	1	
Температура воды на входе	°С	21	
Диапазон нагрева воды	°С	18	6
Перепад давления в системе охлаждения	атм	6	
Скорость воды в канале охлаждения	м/с	2,1	2,2
Расход воды в ветви	л/мин	3,5	3,6

Заключение

Подготовительные работы были завершены, магнитные элементы находятся в производстве.

Информация об авторах

Рябченко Ксения Константиновна, младший научный сотрудник

Старостенко Александр Анатольевич, кандидат физико-математических наук

Information about the Authors

Kseniia K. Riabchenko, Junior Researcher

Aleksandr A. Starostenko, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

*Статья поступила в редакцию 08.11.2023; одобрена после рецензирования 08.11.2023;
принята к публикации 08.11.2023*

*The article was submitted 08.11.2023; approved after reviewing 08.11.2023;
accepted for publication on 08.11.2023*

Научная статья

УДК 621.384.66

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-31-42

Система формирования пучка для бор-нейтронозахватной терапии поверхностных опухолей с замедлителем из материалов на основе оргстекла

Татьяна Викторовна Сычева¹, Евгений Андреевич Берендеев²,
Глеб Дмитриевич Верховод³, Сергей Юрьевич Таскаев⁴

¹⁻⁴Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН
Новосибирск, Россия

¹⁻⁴Новосибирский государственный университет
Новосибирск, Россия

¹sychevatatyanav@gmail.com

²Evgeny.berendeev@gmail.com

³g.verkhovod@alumni.nsu.ru

⁴s.yu.taskaev@inp.nsk.su

Аннотация

Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией разработан в Институте ядерной физики для исследования бор-нейтронозахватной терапии (БНЗТ). Нейтроны генерируются в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Для получения терапевтического пучка нейтронов используют систему формирования пучка, состоящую из замедлителя, отражателя и фильтров. Замедлитель обычно изготавливают из MgF_2 из-за высокого значения сечения неупругого рассеяния нейтронов. Ранее нами было продемонстрировано, что для генерации нейтронов оптимально использовать энергию пучка протонов 2,3 МэВ.

В результате анализа принятых нами ранее решений по формированию терапевтического пучка нейтронов, работ других групп исследователей, а также успешных результатов экспериментов по облучению лабораторных животных и клеточных культур, проводившихся на нашей установке, мы отметили, что с наметившейся в последнее время тенденцией к уменьшению энергии протонов процесс неупругого рассеяния в MgF_2 уже не является определяющим в замедлении нейтронов, и решили рассмотреть материалы на основе оргстекла в качестве материала замедлителя.

В данной работе представлен разработанный нами замедлитель из материала Poly-Biz, позволяющий получать нейтронный пучок такого же качества, как в системе формирования пучка с замедлителем из MgF_2 при энергии протонов 2,3 МэВ, но при более низком токе и энергии пучка протонов, что приведет к уменьшению времени терапии и обеспечит более стабильную и надежную генерацию нейтронов. Долгое время развитие методики БНЗТ сдерживалось недостатком ускорителей заряженных частиц, способных стабильно генерировать нейтроны при энергии протонного пучка 2,5 МэВ и токе 10 мА. Использование СФП с Poly-Biz может помочь упростить требования к ускорителям заряженных частиц и способствовать использованию в БНЗТ ускорителей, которые еще не достигли требуемых параметров.

Ключевые слова

бор-нейтронозахватная терапия, система формирования пучка

Источник финансирования

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 19-72-30005, <https://rscf.ru/project/19-72-30005/>

© Сычева Т. В., Берендеев Е. А., Верховод Г. Д., Таскаев С. Ю., 2023

Для цитирования

Сычева Т. В., Берендеев Е. А., Верховод Г. Д., Таскаев С. Ю. Система формирования пучка для бор-нейтронно-захватной терапии поверхностных опухолей с замедлителем из материалов на основе оргстекла // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 31–42. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-31-42

A Neutron Beam Shaping Assembly for Boron Neutron Capture Therapy of Superficial Tumors

Tatiana V. Sycheva¹, Evgeny A. Berendeev², Gleb D. Verkhovod³,
Sergey Yu. Taskaev⁴

¹⁻⁴Budker Institute of Nuclear Physics, 11, Ac. Lavrentieva ave.,
Novosibirsk, Russia, 630090

¹⁻⁴Novosibirsk State University, Pirogova st., 2
Novosibirsk, Russia, 630090

¹sychevatatyanav@gmail.com

²Evgeny.berendeev@gmail.com

³g.verkhovod@alumni.nsu.ru

⁴s.yu.taskaev@inp.nsk.su

Abstract

The Vacuum Insulated Tandem accelerator have been developed in Budker Institute of Nuclear Physics. Neutrons are generated in ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ reaction. Neutron beam shaping assembly is used for therapeutic beam forming. It consists of the moderator, reflector and filter. Magnesium fluoride is considered optimal material for neutron slowing down because of noticeable cross section of inelastic neutron scattering. Previously, we showed that it is optimal to use proton beam at energy 2.3 MeV for neutron generation.

As a result of a critical analysis of our earlier decisions on the methods used to form a therapeutic neutron beam and decisions of other research groups, as well as successful experiments on the irradiation of laboratory pets and cell cultures carried out at our experimental facility, we noticed that with the recent trend towards a decrease in proton energy the process of inelastic scattering in MgF_2 is no longer decisive in neutron moderation, and it was decided to consider materials based on plexiglass as a moderator material.

In this work we considered Poly-Biz as moderator material and get the neutron beam the same quality as with MgF_2 moderator and proton energy 2.3 MeV but at lower proton energy and current that can cause treatment time reducing and allows more reliable neutron generation. For a long time, the development of BNCT was hindered by the lack of charged particle accelerators that provide stable production of a stationary 2.5 MeV 10 mA proton beam. The use of BSA with Poly-Biz allows the use of these accelerators at lower energy, which improves the reliability of their operation, and reduces the therapy time by more than 2 times, which is also important for therapy. Also, the use of such an BSA simplifies the requirements for a charged particle accelerator and this opens up both the possibility of optimizing the developed accelerators and the use of other accelerators that have not yet reached the required parameters.

Keywords

accelerator based boron neutron capture therapy, beam shaping assembly

Acknowledgments

This research was funded by the Russian Science Foundation (project No. 19-72-30005).

For citation

Sycheva T. V., Berendeev E. A., Verkhovod G. D., Taskaev S. Yu. A neutron beam shaping assembly for boron neutron capture therapy of superficial tumors. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 31–42 (in Russ). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-31-42

Введение

Для бор-нейтроннозахватной терапии (БНЗТ) требуются интенсивные пучки нейтронов с энергией в районе 10 кэВ для лечения глубокорасположенных опухолей, для лечения поверхностных опухолей могут быть использованы пучки с энергией около 10 эВ [1]. Лучшим источником нейтронов является реакция ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ из-за максимального выхода нейтронов с минимальной энергией [2]. Для формирования терапевтического пучка используют систему формирования пучка, состоящую из замедлителя, отражателя, поглотителя и фильтров. Обыч-

но замедлителем служит MgF_2 из-за высокого значения сечения неупругого рассеяния нейтронов с энергией до 1 МэВ.

Ранее нами была разработана и изготовлена система формирования пучка (СФП) с замедлителем из MgF_2 и показаны преимущества использования энергии протонов 2,3 МэВ для генерации нейтронов вместо используемой обычно энергии 2,5 МэВ [3], которое заключается в том, что при этой энергии генерируются нейтроны меньшей энергии, для замедления которых нужна меньшая толщина замедлителя, при том что плотность эпитепловых нейтронов изменяется несущественно. При энергии 2,3 МэВ неупругое рассеяние нейтронов уже не является определяющим процессом при их замедлении. В работе [4] продемонстрирована возможность получения терапевтического пучка нейтронов при энергии протонов 2,1 МэВ с MgF_2 замедлителем. Средняя энергия нейтронов при энергии протонов 2,1 МэВ составляет 100 кэВ, и роль процесса неупругого рассеяния нейтронов уже несущественна в их замедлении.

Этот факт наряду с успешными результатами экспериментов по облучению лабораторных животных и клеточных культур [5, 6] с замедлителем из оргстекла привели к идее использования материалов на основе оргстекла для замедлителя.

В данной работе представлена система формирования пучка с замедлителем из Poly-Biz, позволяющая генерировать пучок такого же качества, как в разработанной нами СФП с MgF_2 замедлителем при меньшем токе и энергии протонов.

1. Система формирования пучка нейтронов

Полная поглощенная доза в бор-нейтронозахватной терапии (БНЗТ) складывается из четырех компонент с разной относительной биологической эффективностью (ОБЭ):

1) борная доза D_B – возникает в реакции $^{10}B(n,\alpha)^7Li$ с образованием двух частиц с высоким ЛПЭ (линейная передача энергии) (4He и 7Li);

2) азотная доза D_N – возникает в реакции $^{14}N(n,p)^{14}C$ с образованием протона, частицы с высоким ЛПЭ;

3) доза быстрых нейтронов D_n – возникает в основном в результате упругого рассеяния нейтронов на ядрах водорода, в результате чего образуются протоны отдачи – частицы с высоким ЛПЭ;

4) фотонная доза D_γ – в реакциях $^7Li(p,p)^7Li$, $^{10}B(n,\alpha)^7Li$ и при распаде 7Be , а также 2,2 МэВ фотоны возникают в реакции $^1H(n,\gamma)^2H$.

Полная поглощенная доза равна сумме этих компонент с учетом относительной и составной биологической эффективности (ОБЭ (RBE) и СБЭ (SBE)):

$$Dw = CBE \cdot D_B \cdot C_B + RBE_p \cdot D_N + RBE_n \cdot D_n + RBE_\gamma \cdot D_\gamma.$$

Разные исследователи используют разные значения коэффициентов. В данной работе мы использовали значения коэффициентов из работы [7]: ОБЭ нейтронов – 3,2, гамма-квантов – 1. Коэффициент СБЭ для здоровой ткани – 1,3, а для опухоли – 3,8.

В данной работе моделирование переноса фотонов и нейтронов осуществлялось с помощью кода NMC на основе метода Монте-Карло с использованием базы данных сечений ENDF-VII. В коде реализован источник нейтронов на основе работы [8] для протонов с энергией от 1,88 до 2,5 МэВ.

Для оценки результатов моделирования введем коэффициент, равный отношению борной дозы к сумме трех остальных компонент – терапевтический коэффициент:

$$TC = \frac{CBE \cdot D_B \cdot C_B}{RBE_p \cdot D_N + RBE_n \cdot D_n + RBE_\gamma \cdot D_\gamma}.$$

Мы также предлагаем использовать Poly-Biz [9] – полиэтилен с вкраплением висмута вместо оргстекла в качестве материала замедлителя. Тонкие висмутовые пластины на выходе

системы формирования пучка используют для фильтрации гамма-излучения. В предлагаемом материале атомы висмута распределены по объему равномерно.

С помощью численного моделирования методом Монте-Карло была подобрана форма замедлителя из оргстекла, обеспечивающая наилучшие параметры терапевтического пучка. Замедлитель этой формы далее называется оптимальным.

Было рассмотрено 3 системы формирования пучка:

1) оптимальным замедлителем из оргстекла (плотность атомов водорода: $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, плотность атомов кислорода: $1,4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, плотность атомов углерода: $4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, плотность оргстекла: $1,19 \text{ г/см}^3$), окруженным графитовым отражателем диаметром 80 см;

2) с оптимальным замедлителем из Poly-Biz (плотность атомов водорода: $5,39 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, плотность атомов висмута: $6,6 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$, плотность атомов углерода: $3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, плотность материала: $2,92 \text{ г/см}^3$), окруженным графитовым отражателем диаметром 80 см;

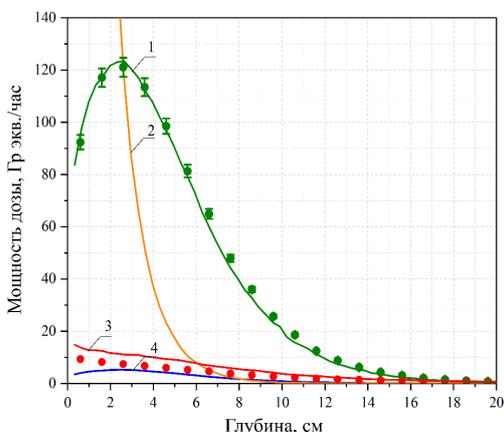
3) система формирования пучка с MgF_2 замедлителем, описанная в [3].

Для валидации результатов моделирования был проведен эксперимент на ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией VITA [10], в котором измеряли пространственное распределение борной дозы и дозы гамма-излучения в водном фантоме разработанными детекторами с двумя полистирольными сцинтилляторами, один из которых обогащен бором, а другой нет [11; 12]. Детектор откалиброван по борной дозе с помощью измерения концентрации бора в сцинтилляторе, и предполагая, что концентрация бора в опухоли 40 ppm. Детектор калиброван по дозе гамма-излучения с помощью сравнения скорости счета детектора и скорости счета дозиметра гамма-излучения ДБГС11-Д [13], расположенного в максимально подобном поле излучения.

Водный фантом P3D01 представлял собой сосуд в форме параллелепипеда размером $330 \times 330 \times 315 \text{ мм}$, заполненный водой. Стенки фантома сделаны из монолитного поликарбоната толщиной 8 мм. Одна из стенок фантома сделана из полиэтилентерефталата (ПЭТ) толщиной 0,5 мм. Эта стенка была ближайшей к источнику излучения. Детекторы прикреплены к специальному механизму с дистанционной системой управления, позволяющему перемещать детекторы по всему объему фантома.

2. Результаты и их обсуждение

3D-расчеты дозовых распределений проводили на прямоугольной сетке с объемом ячейки $0,125 \text{ м}^3$. Измерения дозы в водном фантоме проводили вдоль центральной оси пучка с шагом 1 см. Измерения в ортогональном по отношению к оси пучка направлении проводили на глубине 2 см. Результаты расчета всех компонент дозы в водном фантоме в предположении, что концентрация бора 40 ppm, и результаты измерения борной дозы и дозы гамма-квантов показаны на рис. 1.

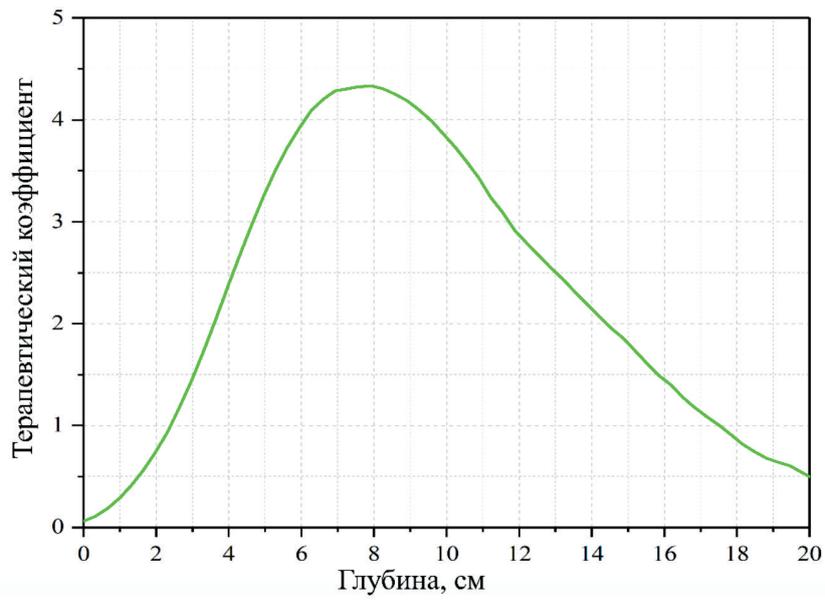


Зависимость терапевтического коэффициента от глубины вдоль оси пучка и его двумерное распределение показаны на рис. 2.

Рис. 1. Распределение компонент дозы по глубине водного фантома при энергии протонов 2,1 МэВ и токе 1 мА: 1 – борная доза; 2 – доза быстрых нейтронов; 3 – доза гамма-излучения; 4 – азотная доза. Расчетные значения изображены сплошными линиями, результаты измерений – точками

Fig. 1. Depth distribution of dose components in a water phantom along the axis of the proton beam at a proton energy of 2.1 MeV and a current of 1 mA: 1 – boron dose; 2 – fast neutron dose; 3 – gamma dose; 4 – nitrogen dose. Calculated values are shown as solid lines, measured as dots

a



б

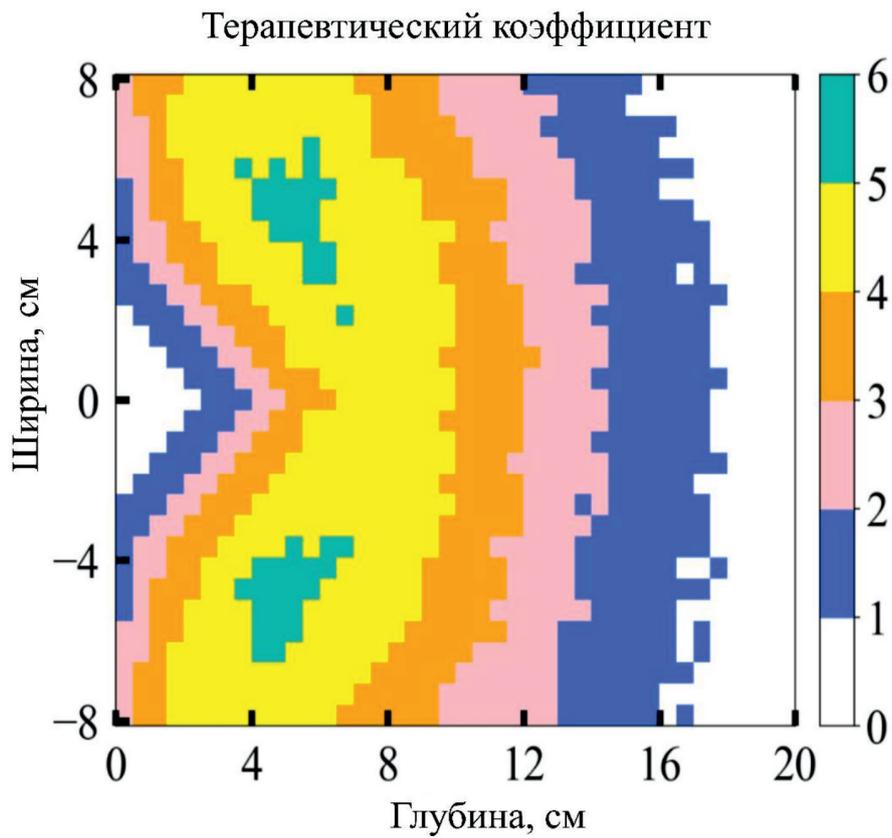


Рис. 2. Терапевтический коэффициент: *a* – распределение по глубине фантома вдоль оси пучка; *б* – двумерное распределение в плоскости, проходящей через ось пучка

Fig. 2. Therapeutic coefficient: *a* – depth distribution along the beam axis; *б* – two-dimensional distribution in the plane passing through the beam axis

Из рисунка видно, что терапевтический коэффициент достигает максимума на глубине 8 см. По этой причине в экспериментах с клеточными культурами и лабораторными животными мы использовали цилиндрический замедлитель высотой 7,2 см и диаметром 20 см. Замедлитель такой толщины значительно уменьшает долю быстрых нейтронов и обеспечивает оптимальное качество излучения.

Рассматривая двумерное распределение терапевтического коэффициента, можно заметить, что он принимает максимальное значение не по оси пучка, а на определенном радиусе. Это происходит из-за того, что энергия нейтронов испускаемых вперед наибольшая. Чтобы приблизить максимум терапевтического коэффициента к осям, следует использовать замедлитель потолще. Форма такого замедлителя может быть разной. Одна из них, оптимальная из нескольких рассмотренных, представлена на рис. 3.

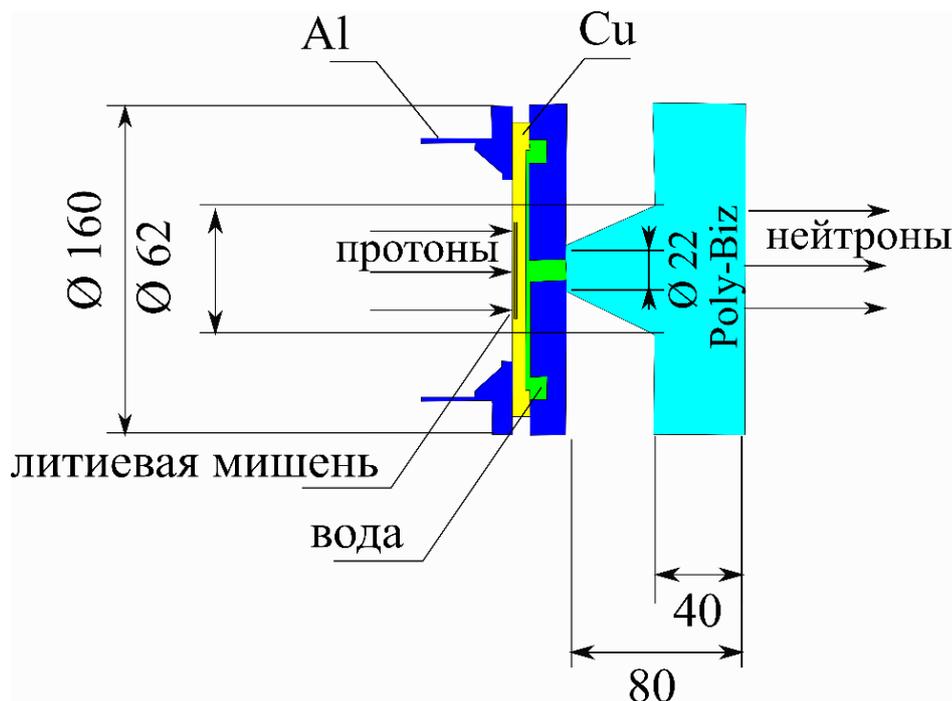


Рис. 3. Оптимальная форма замедлителя. Размеры указаны в мм

Fig. 3. The optimal shape of the moderator. The dimensions of the moderator are in mm

Она представляет собой комбинацию усеченного конуса и цилиндра. Размеры и угол конуса оптимизировали таким образом, чтобы получить однородное распределение терапевтического коэффициента.

Терапевтический коэффициент в водном фантоме для оптимального и цилиндрического замедлителя представлен на рис. 4. Здесь водный фантом был расположен вплотную к замедлителю.

В расчетах с системой формирования пучка фантом располагался вплотную к выходу системы формирования пучка. Плотности потоков частиц рассчитывали в воздухе на выходе системы формирования пучка в отсутствие водного фантома. Результаты расчетов представлены в табл. 1.

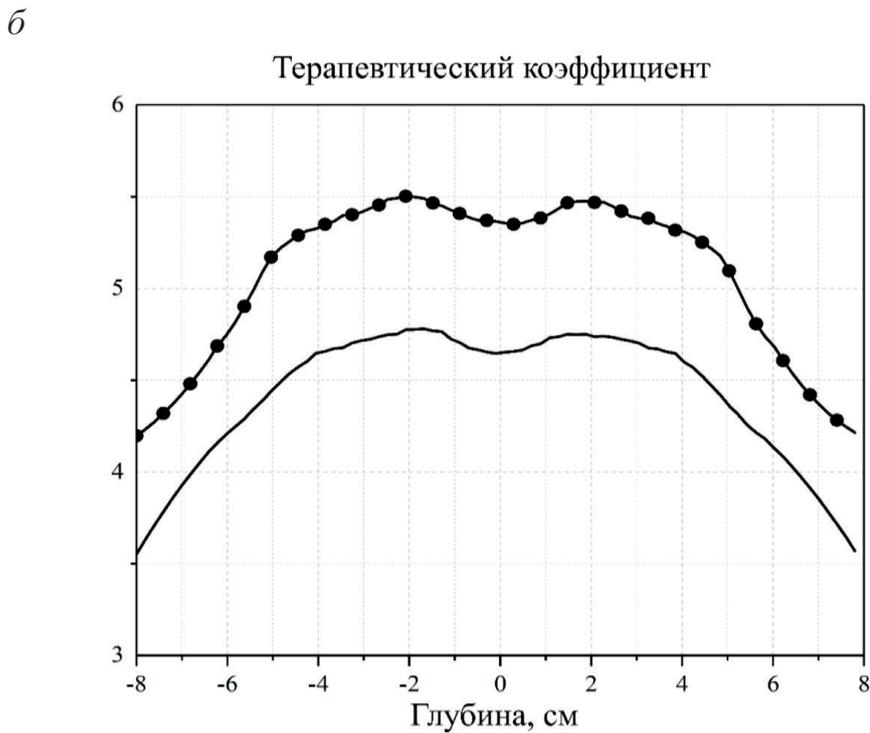
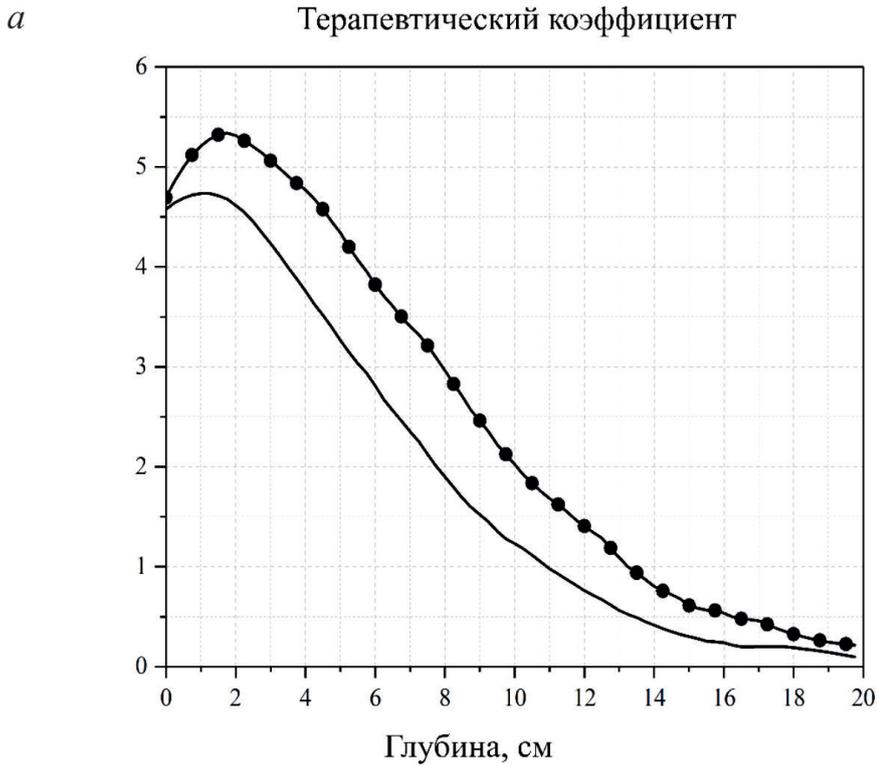


Рис. 4. Терапевтический коэффициент для цилиндрического и оптимального (•) замедлителя: *a* – распределение по глубине вдоль оси пучка; *б* – радиальное распределение на глубине 2 см
 Fig. 4. Therapeutic coefficient for cylindrical and optimal moderator (•): *a* – depth distribution along the beam axis; *б* – radial distribution at the depth 2 cm

Таблица 1

Результаты расчетов для СФП с различными замедлителями
при разных энергиях протонов (E_p)

Table 1

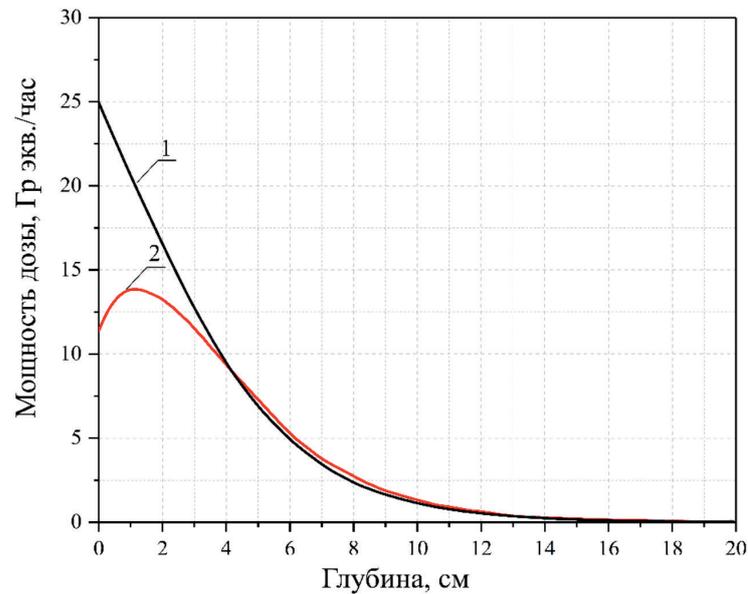
Calculation results for BSA with different moderators

Параметр	E_p , MeV	СФП PMMA	СФП Poly-Biz	СФП MgF ₂
Плотность эпитепловых нейтронов, 10^7 см ⁻²	2	2,85	3,24	5,8
	2,05	4	4,53	
	2,1	5,07	5,7	
	2,3			
Плотность быстрых нейтронов, 10^7 см ⁻²	2	2,63	3,2	3,5
	2,05	4,38	5,34	
	2,1	6,3	7,7	
	2,3			
Плотность тепловых нейтронов, 10^7 см ⁻²	2	13,4	13,5	7,6
	2,05	18	18,1	
	2,1	22,8	22,3	
	2,3			
Плотность фотонов, 10^7 см ⁻²	2	7,7	1,2	0,91
	2,05	8,7	1,5	
	2,1	9,7	1,8	
	2,3			
Максимальная мощность дозы в опухоли, Гр экв./час	2	27,33	27,98	16,8
	2,05	37,78	38,80	
	2,1	48,86	50,94	
	2,3			
Максимальная мощность дозы в здоровой ткани, Гр экв./час	2	7,2	7,1	4,7
	2,05	10,1	10,6	
	2,1	13,6	14,1	
	2,3			
Максимальная мощность борной дозы, Гр экв./час	2	23,2	23,9	14
	2,05	31,8	32,4	
	2,1	40,5	42,3	
	2,3			
Максимальная мощность дозы быстрых нейтронов, Гр экв./час	2	0,8	1	0,65
	2,05	1,5	2,1	
	2,1	2,6	3,4	
	2,3			
Максимальная мощность дозы тепловых нейтронов, Гр экв./час	2	1	1	0,6
	2,05	1,4	1,4	
	2,1	1,8	1,8	
	2,3			
Максимальная мощность фотонной дозы, Гр экв./час	2	2,4	2	1,7
	2,05	3,1	2,9	
	2,1	4	3,5	
	2,3			
Терапевтический коэффициент	2	5,70	6,20	5,8
	2,05	5,42	5,89	
	2,1	5,35	5,77	
	2,3			

Анализ результатов показал, что использование Poly-Biz вместо оргстекла увеличивает как борную дозу, так и терапевтический коэффициент, а следовательно, улучшает качество терапевтического пучка.

Сравним СФП с Poly-Biz с СФП с замедлителем из MgF_2 . Видно, что при энергии 2,05 МэВ и ниже использование Poly-Biz позволяет увеличить значение терапевтического коэффициента и борной дозы. А последней – более, чем в два раза (рис. 5).

а



б

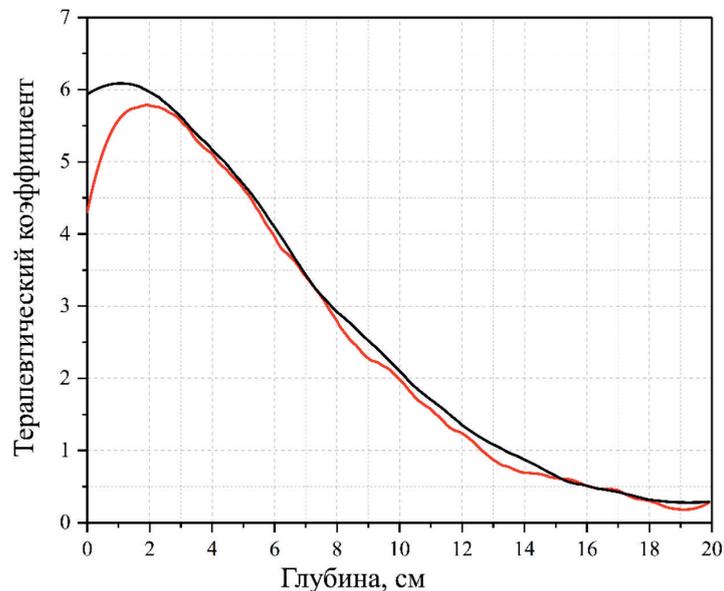


Рис. 5. Распределение борной дозы по глубине (а) и терапевтический коэффициент (б) для СФП с замедлителем из Poly-Biz и энергии протонов 2 МэВ (1) и для СФП с замедлителем из MgF_2 (2) при энергии протонов 2,3 МэВ

Fig. 5. Depth distribution for boron dose (a) and therapeutic coefficient (b) for BSA with Poly-Biz moderator and proton energy 2 MeV (1) and BSA with MgF_2 moderator (2) and proton energy 2.3 MeV

Сравнивая СФП с Poly-Biz с СФП с MgF_2 , можно утверждать, что с их использованием возможно получить одинаковое качество нейтронного пучка, а если сравнивать борную дозу и терапевтический коэффициент, то использование Poly-Biz позволяет получить его при меньшей энергии протонов (2,05 МэВ вместо 2,3 МэВ) и меньшем токе (3мА вместо 7 мА).

3. Применение

Применение СФП с Poly-Biz позволяет использовать ускорители при более низкой энергии, что увеличивает надежность генерации и сокращает время терапии более чем в два раза. Также использование такой СФП упрощает требования для ускорителей заряженных частиц и открывает возможность оптимизации уже существующих ускорителей и использования ускорителей, которые еще не достигли требуемых параметров.

Это предположение требует экспериментальной проверки, которая будет проведена после изготовления СФП с Poly-Biz и будет включать не только измерения разработанными детекторами, но и прямое сравнение с уже изготовленной СФП с MgF_2 .

Обе СФП будут установлены на ускорительном источнике нейтронов ВИТА и параметры нейтронного пучка будут измерены разработанными средствами диагностики. Ускоритель позволяет измерять характеристики пучка одновременно, располагая одну СФП в горизонтальном тракте пучка, а другую – в вертикальном.

Заключение

Мы рассмотрели замедлитель из материала Poly-Biz и с его использованием получили пучок такого же качества, как с использованием замедлителя из MgF_2 и энергии протонов 2,3 МэВ, но при меньшей энергии протонов и токе, что увеличивает надежность генерации нейтронов и уменьшает время терапии.

Так как в таком пучке достаточно много тепловых нейтронов, применение Poly-Biz может быть перспективным для лечения поверхностных опухолей и животных. Конечно же, данное предложение требует экспериментального подтверждения, что будет проведено после изготовления СФП с Poly-Biz.

Верификация будет заключаться не только в измерении характеристик пучка разработанными средствами диагностики, но и в прямом сравнении с уже изготовленной СФП с MgF_2 . Также будет исследована активация висмута.

Список литературы

1. **Fujimoto N., Tanaka H., Sakurai Y., Takata T., Kondo N., Narabayashi M., Nakagawa Y., Watanabe T., Kinashi Y., Masunaga S., Maruhashi A., Ono K., Suzuki M.** Improvement of depth dose distribution using multiple-field irradiation in boron neutron capture therapy // *Appl Radiat Isot.* 2015. Vol. 106.
2. **Taskaev S.** Accelerator based epithermal neutron source // *Phys. Part. Nucl.* 2015. Vol. 46. P. 956-990.
3. **Zaidi L., Kashaeva E., Lezhnin S., Malyshkin G., Samarin S., Sycheva T., Taskaev S., Frolov S.** Neutron-beam-shaping assembly for Boron Neutron-Capture Therapy // *Phys. At. Nucl.* 2017. Vol. 80. P. 60–66.
4. **Torres-Sánchez P., Porrás I., Ramos Chernenko N., Saavedra F., Praena J.** Optimized beam shaping assembly for a 2.1-MeV proton-accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy // *Scientific Reports.* 2021. Vol. 11. P. 7576.
5. **Kanygin V., Razumov I., Zaboronok A., Zavjalov E., Kichigin A., Solovieva O., Tsygankova A., Guselnikova T., Kasatov D., Sycheva T., Mathis B., Taskaev S.** Dose-dependent sup-

- pression of human glioblastoma xenograft growth by accelerator-based boron neutron capture therapy with simultaneous use of two boron-containing compounds // *Biology*. 2021. Vol. 10, № 1124.
6. **Kanygin V., Kichigin A., Zaboronok A., Kasatova A., Petrova E., Tsygankova A., Zavjalov E., Mathis B., Taskaev S.** In vivo Accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy for Spontaneous Tumors in Large Animals: Case Series // *Biology*. 2022. Vol. 11, № 138.
 7. **Saurwein W. et al.** (Eds.) *Neutron Capture Therapy: Principles and Applications*. Springer, Berlin, Germany, 2012. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-31334-9>
 8. **Lee C. L., Zhou X. L.** Thick target neutron yields for the ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 1999. Vol. 152, № 1. P. 1-11.
 9. Poly-Biz specifications. URL: <http://www.shieldwerx.com/assets/SWX-217%202018.2.pdf>
 10. **Taskaev S., Berendeev E., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov I., Koshkarev A., Makarov A., Ostreinov G., Porosev V., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E., Sorokin I., Sycheva T., Verkhovod G.** Neutron Source Based on Vacuum Insulated Tandem Accelerator and Lithium Target // *Biology*. 2021. Vol. 10, iss. 5. № 350.
 11. **Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Porosev V., Savinov S., Shchudlo I., Taskaev S.** A multichannel neutron flux monitoring system for a boron neutron capture therapy facility // *Journal of Instrumentation*. 2019. Vol. 14. P12002-P12002.
 12. **Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Porosev V., Savinov G., Shchudlo I., Taskaev S., Verkhovod G.** Initial trials of a dose monitoring detector for boron neutron capture therapy // *JINST*. 2021. Vol. 16. № P01024.
 13. Wide range gamma area monitor DBG – S11D. URL: http://www.doza.ru/eng/catalog/Continuous_radiation_monitoring/6094/

References

1. **Fujimoto N., Tanaka H., Sakurai Y., Takata T., Kondo N., Narabayashi M., Nakagawa Y., Watanabe T., Kinashi Y., Masunaga S., Maruhashi A., Ono K., Suzuki M.** Improvement of depth dose distribution using multiple-field irradiation in boron neutron capture therapy // *Appl Radiat Isot*. 2015. Vol. 106.
2. **Taskaev S.** Accelerator based epithermal neutron source // *Phys. Part. Nucl*. 2015. Vol. 46. P. 956-990.
3. **Zaidi L., Kashaeva E., Lezhnin S., Malyshkin G., Samarin S., Sycheva T., Taskaev S., Frolov S.** Neutron-beam-shaping assembly for Boron Neutron-Capture Therapy // *Phys. At. Nucl*. 2017. Vol. 80. P. 60–66.
4. **Torres-Sánchez P., Porras I., Ramos Chernenko N., Saavedra F., Praena J.** Optimized beam shaping assembly for a 2.1-MeV proton-accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy // *Scientific Reports*. 2021. Vol. 11. P. 7576.
5. **Kanygin V., Razumov I., Zaboronok A., Zavjalov E., Kichigin A., Solovieva O., Tsygankova A., Guselnikova T., Kasatov D., Sycheva T., Mathis B., Taskaev S.** Dose-dependent suppression of human glioblastoma xenograft growth by accelerator-based boron neutron capture therapy with simultaneous use of two boron-containing compounds // *Biology*. 2021. Vol. 10, № 1124.
6. **Kanygin V., Kichigin A., Zaboronok A., Kasatova A., Petrova E., Tsygankova A., Zavjalov E., Mathis B., Taskaev S.** In vivo Accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy for Spontaneous Tumors in Large Animals: Case Series // *Biology*. 2022. Vol. 11, № 138.
7. **Saurwein W. et al.** (Eds.) *Neutron Capture Therapy: Principles and Applications*. Springer, Berlin, Germany, 2012.
8. **Lee C. L., Zhou X. L.** Thick target neutron yields for the ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ reaction near threshold // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 1999. Vol. 152, № 1. P. 1-11.

9. Poly-Biz specifications. URL: <http://www.shieldwerx.com/assets/SWX-217%202018.2.pdf>
10. **Taskaev S., Berendeev E., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov I., Koshkarev A., Makarov A., Ostreinov G., Porosev V., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E., Sorokin I., Sycheva T., Verkhovod G.** Neutron Source Based on Vacuum Insulated Tandem Accelerator and Lithium Target // *Biology*. 2021. Vol. 10, iss. 5. № 350.
11. **Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Porosev V., Savinov S., Shchudlo I., Taskaev S.** A multichannel neutron flux monitoring system for a boron neutron capture therapy facility // *Journal of Instrumentation*. 2019. Vol. 14. P12002-P12002.
12. **Bykov T., Kasatov D., Koshkarev A., Makarov A., Porosev V., Savinov G., Shchudlo I., Taskaev S., Verkhovod G.** Initial trials of a dose monitoring detector for boron neutron capture therapy // *JINST*. 2021. Vol. 16. № P01024.
13. Wide range gamma area monitor DBG – S11D. URL: http://www.doza.ru/eng/catalog/Continuous_radiation_monitoring/6094/

Информация об авторах

Татьяна Викторовна Сычева, научный сотрудник

Евгений Андреевич Берендеев, кандидат физико-математических наук

Глеб Дмитриевич Верховод, аспирант

Сергей Юрьевич Таскаев, доктор физико-математических наук

Information about the Authors

Tatiana V. Sycheva, Researcher

Evgeny A. Berendeev, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Gleb D. Verkhovod, Postgraduate Student

Sergey Yu. Taskaev, Doctor of Physical and Mathematical Sciences

*Статья поступила в редакцию 13.09.2023;
одобрена после рецензирования 10.11.2023; принята к публикации 16.11.2023
The article was submitted 13.09.2023;
approved after reviewing 10.11.2023; accepted for publication on 16.11.2023*

Научная статья

УДК 533.9.01

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-43-60

Механизм развития пучково-плазменного разряда в газодинамической ловушке

Владимир Владимирович Глинский¹, Евгения Павловна Волчок²
Владимир Вадимович Анненков³, Игорь Валериевич Тимофеев⁴

Новосибирский государственный университет
Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН
Новосибирск, Россия

¹v.v.glinskiy@yandex.ru, <https://orcid.org/0000-0003-4251-4635>

²e.p.volchok@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0002-8520-3207>

³annikov.phys@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0002-5577-8595>

⁴I.V.Timofeev@inp.nsk.su, <https://orcid.org/0000-0001-5083-9777>

Аннотация

В работе изучается механизм зажигания плазменного разряда в газодинамической ловушке (ГДЛ) в объеме, сечение которого значительно превышает сечение инжектируемого электронного пучка. Это свойство пучково-плазменного разряда делает привлекательным использование относительно маломощных электронных пучков для создания в открытых ловушках стартовой плазмы с параметрами, достаточными для ее дальнейшего эффективного нагрева с помощью нейтральной инжекции. Несмотря на то что эффективная ионизация плазмы далеко за пределами электронного пучка в открытых ловушках экспериментально наблюдается уже более 60 лет, детальный механизм этого явления до сих пор не ясен. Особенно много вопросов возникает в режимах, которые реализуются в таких больших термоядерных установках, как ГДЛ, где длина релаксации пучка оказывается существенно меньше длины ловушки, а возбуждаемые пучком плазменные колебания локализованы вблизи входной магнитной пробки. На основе недавних экспериментов [E. I. Soldatkina et al. Nucl. Fusion 62, 066034 (2022)] был предложен сценарий развития разряда в ГДЛ, согласно которому компактная область интенсивных плазменных колебаний сначала быстро расширяется по радиусу, ионизируя газ в окрестности магнитной пробки за пределами магнитной силовой трубки, по которой движется пучок, а затем начинается более медленный процесс ионизации в остальном объеме ловушки. Этот процесс реализуется как за счет хвоста надтепловых электронов, которые формируются в зоне турбулентности, так и благодаря тепловым электронам, которые получают энергию из области накачки по каналу продольной электронной теплопроводности. Чтобы оценить, насколько хорошо предложенный сценарий объясняет наблюдаемую в экспериментах динамику роста плотности плазмы в разных частях установки, в работе проводится PIC-моделирование радиального расширения зоны мелкомасштабной плазменной турбулентности и предлагается упрощенная модель ударной ионизации во всем объеме ловушки как тепловыми, так и надтепловыми электронами.

Ключевые слова

пучково-плазменный разряд, низкотемпературная плазма, открытые ловушки

Финансирование

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФ, грант № 22-22-00514.

Для цитирования

Глинский В. В., Волчок Е. П., Анненков В. В., Тимофеев И. В. Механизм развития пучково-плазменного разряда в газодинамической ловушке // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 43–60. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-43-60

© Глинский В. В., Волчок Е. П., Анненков В. В., Тимофеев И. В., 2023

Mechanism of Beam-Plasma Discharge Development in the Gas Dynamic Trap

Vladimir V. Glinskiy¹, Evgeniia P. Volchok²
Vladimir V. Annenkov³, Igor V. Timofeev⁴

Novosibirsk State University,
Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS,
Novosibirsk, Russia

¹v.v.glinskiy@yandex.ru, <https://orcid.org/0000-0003-4251-4635>

²e.p.volchok@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0002-8520-3207>

³annenkov.phys@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0002-5577-8595>

⁴I.V.Timofeev@inp.nsk.su, <https://orcid.org/0000-0001-5083-9777>

Abstract

The work studies how a plasma discharge in the Gas Dynamic Trap (GDT) is ignited in a volume significantly exceeding the volume of the injected electron beam. This property of a beam-plasma discharge makes it attractive to use relatively low-power electron beams to create starting plasma in open traps with parameters sufficient for its further effective heating by the neutral injection. Despite the fact that effective ionization of plasma far beyond the electron beam in open traps has been observed experimentally for more than 60 years, the detailed mechanism of this phenomenon is still not clear. Particularly many questions arise in regimes that are implemented in such large fusion facilities as GDT, where the relaxation length of the beam turns out to be significantly less than the length of the trap, and the turbulence excited by the beam is localized near the entrance magnetic mirror. Based on recent experiments [E.I. Soldatkina et al. Nucl. Fusion 62, 066034 (2022)], we have proposed a scenario for the development of a discharge in GDT, according to which a compact region of intense plasma turbulence first rapidly expands radially, ionizing the gas outside the beam tube in the vicinity of a magnetic mirror, and then a slower ionization process begins in the rest trap volume both due to the tail of suprathermal particles that are formed in the turbulence zone, and due to thermal electrons that receive energy from the pumping region via the longitudinal electron thermal conductivity. To assess how well this scenario explains the experimentally observed dynamics of plasma density growth in different parts of the facility, we carry out particle-in-cell simulations of the radial expansion of the turbulence zone and propose a simplified model of impact ionization in the entire volume of the trap by both thermal and suprathermal electrons.

Keywords

beam-plasma discharge, low-temperature plasma, mirror traps

Funding

The work is financially supported by RSF, grant № 22-22-00514.

For citation

Glinskiy V. V., Volchok E. P., Annenkov V. V., Timofeev I. V. Mechanism of beam-plasma discharge development in the Gas Dynamic Trap. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 43–60 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-43-60

Введение

Первые эксперименты по зажиганию плазменного разряда электронным пучком в открытых магнитных ловушках [1–5] проводились в начале 60-х годов прошлого века на весьма компактных установках. Длина коллективной релаксации пучка, как правило, была сопоставима с расстоянием между магнитными пробками и составляла десятки сантиметров, а пробочное отношение, обеспечивающее сжатие сечения пучка, было невысоким (2–4). Кроме того, магнитные поля в таких ловушках были настолько слабыми, что электронная циклотронная частота не превышала плазменной ($\Omega_e < \omega_p$). В этих условиях было естественно предполагать [6], что плазменные колебания возбуждаются пучком сразу по всей длине ловушки и при движении в менее плотную периферийную плазму должны выходить на верхнегибридный резонанс. Благодаря этому резонансу плазменные колебания способны передавать энергию пучка плазменным электронам вне его сечения, способствуя радиальному перемещению фронта ионизации далеко за пределы той магнитной силовой трубки, по которой движется пучок.

Но такой механизм не годится для объяснения результатов недавних экспериментов на газодинамической ловушке (ГДЛ) [7], в которых инжекция весьма тонкого (радиусом < 1 мм

в пробке) электронного пучка с током 5–8 А и энергией 25 кэВ приводила к полной ионизации плазмы с плотностью 10^{12} – 10^{13} см⁻³ во всем объеме ловушки. Отличительной особенностью этих экспериментов было то, что длина релаксации пучка в них (~5 см) была мала по сравнению с расстоянием между пробками (≈ 7 м), а большое пробочное отношение (~30) делало входную пробку наиболее предпочтительным местом для развития пучковой неустойчивости. Результаты экспериментов подтвердили предположение о локализации зоны интенсивных плазменных колебаний вблизи входной пробки, что потребовало пересмотра старых представлений о механизме выноса колебаний на периферию. Действительно, в режиме сильного магнитного поля ($\Omega_e/\omega_p = 10$ – 25) следовало бы ожидать, что в спектре пучковой неустойчивости должны доминировать продольные ленгмюровские волны, распространение которых в менее плотные участки периферийной плазмы запрещено законами геометрической оптики. Численное моделирование пучково-плазменного взаимодействия при характерных параметрах ГДЛ методом частиц в ячейках [8] показало, что пучок, диаметр которого сопоставим с размером плазменного скин-слоя c/ω_p , вместо ленгмюровских волн раскачивает косые вистлеры, которые не только способны заходить в менее плотную плазму до того предела, который им диктует геометрическая оптика, но и проникают дальше этого предела благодаря нелинейным эффектам. Такое свободное распространение раскачиваемых пучком колебаний к периферии плазмы делает возможным радиальное расширение зоны турбулентности за счет ударной ионизации периферийной плазмы электронами, осциллирующими в поле плазменных колебаний.

На основе этих представлений в работе [8] обсуждался следующий возможный сценарий развития плазменного разряда в ГДЛ:

- пучок свободно проходит в газе через всю установку, при этом первые 150–200 мкс в ионизации участвуют преимущественно электроны пучка, поскольку большинство вновь рожденных электронов плазмы имеют энергию ниже потенциала ионизации I , а те, что превышают этот порог, участвуют в процессе один раз и не способны сделать этот процесс экспоненциально быстрым;
- затем плотность плазмы внутри силовой трубки пучка оказывается достаточно большой для развития пучковой неустойчивости, это означает, что в плазме появляются колебания электронов, энергия осцилляторного движения которых превышает I , что приводит к экспоненциально быстрой ионизации плазмы в области, продольные размеры которой ограничены длиной релаксации пучка (~5 см), предполагается, что на этой же стадии область турбулентности расширяется по радиусу до размеров, значительно превышающих размер пучка, и ограничивается специальными лимитерами;
- ионизация за пределами турбулентной области, в которой и сосредоточены все энергопотери пучка, идет как за счет выходящего из нее потока быстрых (надтепловых) частиц, ускоряемых турбулентными полями, так и за счет тепловых электронов, которые получают энергию из области накачки благодаря классической электронной теплопроводности вдоль магнитного поля.

Чтобы оценить адекватность этого сценария, сформулируем на его основе упрощенную модель, которая будет описывать динамику роста плотности плазмы в различных частях установки и результаты которой можно сравнивать с данными зондовых и интерферометрических измерений в ГДЛ. Для демонстрации принципиальной возможности радиального движения фронта ионизации за счет проникновения на периферию плазмы интенсивных плазменных колебаний мы проведем численные расчеты релаксации пучка методом частиц в ячейках, при этом в PIC (Particle-In-Cell) модели будут самосогласованно учтены процессы ударной ионизации, скорость наработки плазмы в которых зависит от амплитуды локального электрического поля. Кроме получения качественной картины явления, PIC-модель может дать еще и полезные количественные заключения относительно полной мощности, которая закачивается пучком в турбулентную область, и функции распределения ускоряемых в ней быстрых частиц. Зная эту информацию, мы строим упрощенную модель плазмы, функция распределения

которой в каждой точке установки представляется в виде максвелловского ядра, температура которого определяется из решения уравнения теплопроводности с заданным локализованным источником нагрева, и постоянного во времени надтеплого хвоста с известным распределением по энергиям. Плотность тепловой части при этом растет с учетом ионизационных процессов от всех частиц.

2. PIC-моделирование турбулентной области

2.1. Описание PIC-модели

Детальное численное моделирование турбулентных процессов в системе «плазма – пучок» проводилось с использованием собственного релятивистского электромагнитного 2D3V PIC-кода, основанного на методе частиц в ячейках. Метод подразумевает решение уравнений движения для модельных макрочастиц, движущихся в электромагнитных полях, вычисляемых на сетке посредством решения уравнений Максвелла. Для моделирования динамики плазмы из первых принципов использовались хорошо известные вычислительные схемы Бориса [9] и Йи [10], описывающие самосогласованную эволюцию частиц и полей. Вычисление токов осуществлялось с помощью сохраняющего заряд метода Езиркепова [11]. На торцах вычислительной области реализованы открытые граничные условия, позволяющие поддерживать однородное распределение частиц плазмы на краях системы, а также моделировать реалистичную инжекцию электронного пучка через границу плазмы. Более детальное описание реализации открытых границ и основных численных схем представлено в работе [12].

Схема вычислительной области представлена на рис. 1. В центре системы расположен столб полностью ионизованной плазмы, по которому слева направо распространяется электронный пучок, возбуждающий интенсивные плазменные колебания. Для моделирования процесса ионизации электрическими полями в области развитой пучково-плазменной турбулентности столб плазмы помещен в газ, содержащий малую затравку электронной плотности на уровне $n_s = 10^{-1}n_0$ (где n_0 – плотность однородной полностью ионизованной плазмы). Суммарная плотность вещества в этой области нормирована на n_0 . Соответственно, плотность газа $n_g/n_0 = 1 - n_s/n_0$. Длина вычислительной области составляет $L_x = 92 c/\omega_p$, что при начальной плотности $n_0 = 4 \cdot 10^{-12} \text{ см}^{-3}$ соответствует ≈ 24 см. Область релаксации электронного пучка со скоростью $v_b = 0,3283c$ ($E_b = 30$ кэВ) и плотностью $n_b = 0,0107n_0$ полностью укладывается в длину системы.

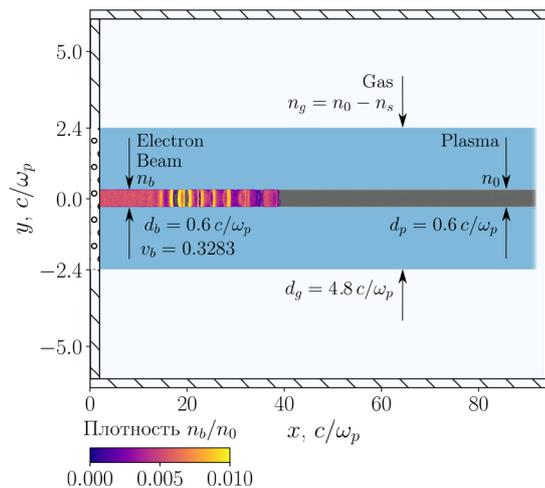


Рис. 1. Схема вычислительной области в задаче об ионизации плазмы турбулентными полями
Fig. 1. Layout of the computational domain in the problem of plasma ionization by turbulent fields

Электронный пучок диаметром $d_b = 0,6 c/\omega_p$ с температурой $T_b = m_e \Delta v_b^2/2 = 1$ эВ описывается гауссовым распределением по углам θ с большим разбросом, которое получается при пересчете начального распределения с $\Delta\theta = 0,05$ в области слабого магнитного поля на диоде в область сильного магнитного поля $\Omega_e/\omega_p = 9,653$ в предположении сохранения энергии и магнитного момента частиц пучка. Такая постановка соответствует транспортировке электронного пучка от места создания в область пробки на установке ГДЛ. Для того чтобы избежать влияния шумовых полей, плотность плазменного столба при приближении к правой границе области плавно понижается до n_s .

В коде реализованы диагностики, позволяющие записывать распределение частиц каждого сорта по скоростям в выбранной области и во всей системе, а также распределение полей и плотности по координатам в разные моменты времени. Пространственный шаг вычислительной сетки составляет $\Delta x = \Delta y = 0,02 c/\omega_p$, временной – $\Delta t = 0,01\omega_p^{-1}$. Для вычисления используется 100 частиц каждого вида в ячейке. Модельные макрочастицы описываются сплайнами второго порядка.

Механизм ионизации реализован следующим образом. Возбуждаемые тонким электронным пучком колебания могут проникать в окружающий газ на долю длины волны, сообщая затравочным электронам в этой области дополнительную энергию. Если осцилляторная энергия электронов превысит потенциал ионизации $\mathcal{E}_0(t) = m_e v_\varepsilon^2/2 > I$, где $v_\varepsilon = eE_0/(m_e c \omega_p) \sin(\omega_p t)$, такие электроны будут способны ионизовать частицы нейтрального газа в результате столкновений с ними. Изменение плотности электронов в таком случае будет пропорционально остаточной плотности газа, числу уже рожденных электронов и сечению ионизации:

$$\frac{dn_e}{dt} = (n_0 - n_e(t))n_e(t) \int_I^\infty \sigma(\mathcal{E}) |v_\varepsilon| \delta(\mathcal{E} - \mathcal{E}_0(t)) d\mathcal{E}, \quad (1)$$

где в приближении холодной плазмы ее функция распределения описывается дельта-функцией по энергиям. В качестве сечения ионизации используется аналитическая аппроксимация на базе двухчастичных столкновений, описанная в работе [13]:

$$\frac{d\sigma(W, \mathcal{E})}{dW} = \frac{4\pi a_0^2}{I(t+2)} \left\{ \frac{1}{(w+1)^2} + \frac{1}{(t-w)^2} - \frac{1}{(w+1)(t-w)} + \frac{4}{3} \left[\frac{1}{(w+1)^3} + \frac{1}{(t-w)^3} \right] \right\}, \quad (2)$$

где $a_0 = \hbar^2/m_e/e^2$ – боровский радиус, а также введены обозначения: $t = \mathcal{E}/I$ – энергия налетающих электронов, $w = W/I$ – энергия рожденных электронов, которая изменяется от 0 до $W = (\mathcal{E} - I)/2$. Полное сечение ионизации, соответственно,

$$\sigma(\mathcal{E}) = \int_0^{(\mathcal{E}-I)/2} \frac{d\sigma(W, \mathcal{E})}{dW} dW. \quad (3)$$

Приведенная аппроксимация хорошо согласуется с экспериментальными данными для сечения ударной ионизации в области малых энергий налетающих электронов, которые и учитываются в данной постановке задачи.

В вычислительном коде на каждом шаге по времени Δt для каждой пространственной ячейки, где присутствует неионизованный газ, вычисляется среднее по узлам электрическое поле. Если обезразмеренное на величину $m_e c \omega_p/e$ поле оказывается больше, чем $E_I = \sqrt{2I/(m_e c^2)} \approx 0,007$, то плотность, приписываемая каждой частице из данной ячейки, увеличивается по закону

$$n(t + \Delta t)/N_e = n(t)/N_e \frac{\exp(\alpha)}{1+n(t)(\exp(\alpha)-1)}, \quad (4)$$

полученному путем интегрирования выражения (1) по времени. Здесь N_e – число частиц в ячейке и

$$\alpha = \int_0^{\Delta t} \sigma(\varepsilon_0)/\sigma_0 |v_\varepsilon| dt, \quad (5)$$

где $\sigma_0 = \omega_p/(n_0 c)$ – величина размерности сечения. Плотность газа в ячейке уменьшается на соответствующую величину $\Delta n = n(t + \Delta t) - n(t)$.

2.2. Механизм расширения зоны турбулентности

Численное моделирование процесса релаксации электронного пучка в условиях, близких к реализуемым на установке ГДЛ, показало [8], что даже в сильном магнитном поле тонкий ($d_b \sim c/\omega_p$) электронный пучок возбуждает интенсивные плазменные колебания, которые могут проникать в спадающую плотность плазмы и даже выходить за ее пределы на расстояния порядка $l \sim v_b/\omega_p$. Рассмотрим начальную стадию этого процесса (рис. 2, а), когда плазма присутствует только в объеме пучка.

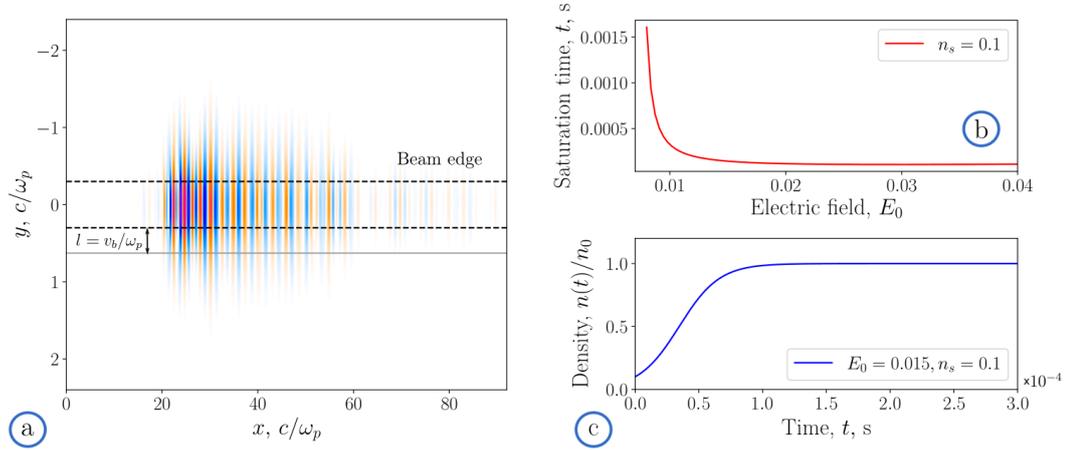


Рис. 2. (а) Продольные электрические поля, генерируемые тонким пучком ($d_b = 0,6 c/\omega_p$, $v_b = 0,3283 c$, $n_b = 0,0107 n_0$). (б) Время, требуемое для достижения полной ионизации плазмы при $n_s = 10^{-1} n_0$, в зависимости от амплитуды электрического поля в этой точке. (в) Рост плотности со временем при $n_s = 10^{-1} n_0$ и $E_0 = 0,015$

Fig. 2. (a) Longitudinal electric fields generated by a thin beam ($d_b = 0,6 c/\omega_p$, $v_b = 0,3283 c$, $n_b = 0,0107 n_0$). (b) Time needed for the complete plasma ionization at $n_s = 10^{-1} n_0$ as a function of the local electric field amplitude. (c) Temporal growth of plasma density at $n_s = 10^{-1} n_0$ and $E_0 = 0,015$

Для того чтобы ионизация могла произойти, безразмерная амплитуда электрического поля, выходящего за пределы плазмы, должна превышать $E_0 > \sqrt{2I/(m_e c^2)} \approx 0,007$. Согласно результатам численного моделирования, амплитуда выступающих электрических полей вблизи края пучка составляет $\sim 0,015$. Аналитические оценки времени полной ионизации плазмы ($n(t_s) - 1 < 10^{-3}$) в точке с уровнем затравки порядка $n_s = 10^{-1} n_0$ для такого поля (по формуле (1)) предсказывают $t_s \sim 150$ мкс (рис. 2, б, в). Эти обстоятельства позволяют предположить, что рассматриваемый механизм ионизации способен описать быстрое радиальное расширение плазмы в области релаксации пучка.

Чтобы проверить это предположение, было проведено численное моделирование, в котором столб плазмы, по которой распространяется электронный пучок, окружен слабо ионизованным газом с затравкой электронной плотности на уровне 10 % от плотности плазмы в цен-

тре системы (см. рис. 1). Поскольку ионизация – достаточно медленный процесс на масштабе времен электронной динамики, воспроизводимой методом частиц в ячейках, сечение ионизации, используемое в моделировании, было искусственно увеличено на несколько порядков ($\sigma_{eff} = 10^4 \sigma(\varepsilon)$), что эквивалентно увеличению скорости процесса во столько же раз.

Результаты моделирования представлены на рис. 3. Слева показана карта плотности электронов в момент времени $\sim 6000\omega_p^{-1}$. Динамика расширения поперечного профиля плазмы в сечении, обозначенном пунктирной линией, показана на рис. 3, *справа*.

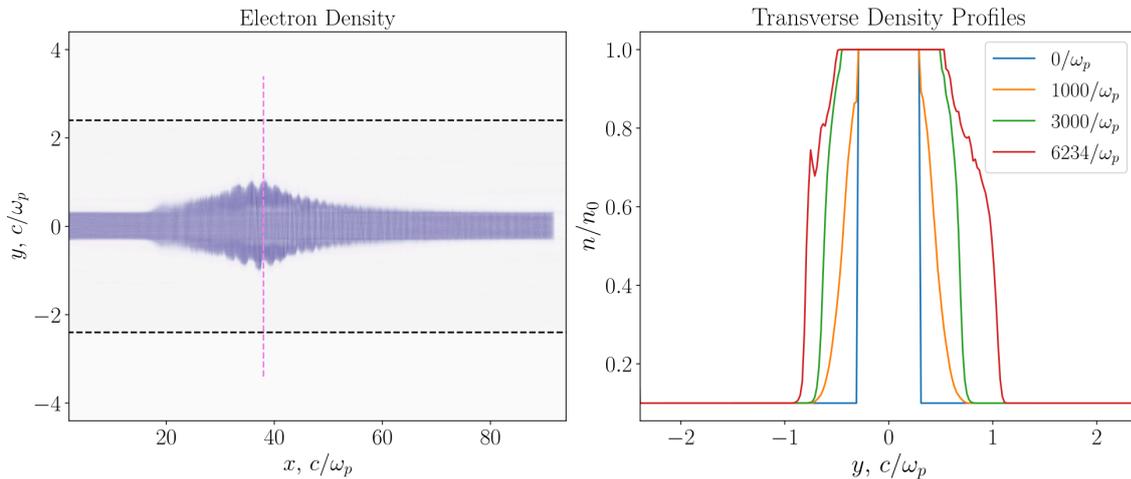


Рис. 3. Ионизация газа в области турбулентных полей: *слева* – карта электронной плотности в момент времени $t\omega_p = 6234$ (черные пунктирные линии обозначают область, занятую слабо ионизованным газом); *справа* – поперечные профили плотности электронов в разные моменты времени на линии, обозначенной слева

Fig. 3. Gas ionization in the region of turbulent fields. Left: electron density map in the moment $t\omega_p = 6234$ (black dashed lines limit the region of the weakly ionized gas). Right: transverse profiles of electron density at different times along the line indicated in left figure

Видно, что за время расчета (~ 50 нс) поперечный размер плазменного столба в области, где возбуждены интенсивные плазменные колебания, увеличился почти в 3 раза. Если учесть, что скорость процесса ионизации была искусственно увеличена, то время расширения зоны турбулентности с реалистичным сечением ионизации оценивается на уровне $\sim 0,5$ мс. Полученные результаты позволяют сделать вывод о принципиальной возможности такого механизма ионизации, при этом расширение турбулентной области происходит на временах, сравнимых с экспериментально наблюдаемым временем нарастания плотности в ловушке, поэтому динамику этого процесса надо учитывать при последующих интерпретациях экспериментальных данных.

2.3. Генерация надтепловых частиц в области релаксации пучка

За пределами области релаксации генерация плазмы происходит благодаря процессам ударной ионизации атомов газа как электронами пучка, так и электронами плазмы, ускоренными турбулентными полями и способными распространяться вдоль силовых линий магнитного поля в глубь ловушки. Этот процесс ускоряется благодаря нагреву электронов уже наработанной плазмы за счет потока энергии, поступающего из области релаксации пучка по каналу продольной электронной теплопроводности. Чтобы определить вклад тепловых и ускоренных частиц в процесс ионизации, необходимо оценить долю энергии, которую электронный пучок теряет на нагрев плазмы, а также основные параметры распределения быстрых электронов. С этой целью было проведено моделирование инжекции тонкого электронного пучка в широ-

кую однородную плазму. На рис. 4, *a* показано расположение диагностик продольного потока энергии (синие пунктирные линии) и функции распределения частиц по продольным скоростям в области турбулентности (черный прямоугольник). Для реалистичного описания процесса передачи энергии от электронов пучка плазме в данном моделировании учитывалась ионная динамика. Параметры электронного пучка были следующими: ширина $d_b = 0,9 c/\omega_p$, скорость $v_b = 0,3018c$ (энергия 25 кэВ) и плотность $n_b = 0,0263n_0$. Начальная температура электронов $T_e = 20$ эВ, ионов – 5 эВ. Каждый сорт частиц моделировался 49 частицами в ячейке. Внешнее магнитное поле составляло $\Omega_e/\omega_p = 8$. Остальные параметры системы совпадают с перечисленными ранее.

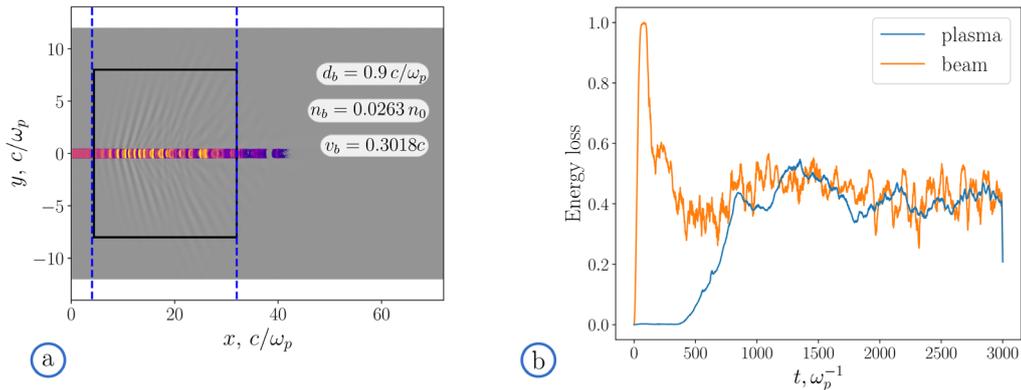


Рис. 4. Результаты измерения энергопотерь пучка и распределения электронов плазмы: *a* – карта плотности электронов плазмы (серым) и пучка (цветом). Пунктирные линии обозначают границы области наиболее интенсивной релаксации пучка, на которых диагностировались потоки энергии. Прямоугольником обозначены границы области, где производилось вычисление функции распределения частиц; *b* – энергоданс пучка и плазмы в области релаксации (оранжевая кривая соответствует разности потоков энергии через сечения, ограничивающие зону релаксации, синяя кривая соответствует мощности, которая выносится быстрыми электронами плазмы из области релаксации. Обе зависимости нормированы на мощность пучка, которая вносится в систему через границу вычислительной области)

Fig. 4. Density map for both plasma electrons (grey) and beam (colour). Dashed lines show the boundaries of the beam relaxation region where the energy flux is measured. The solid rectangle limits the area where distribution functions of particles are calculated (*a*). Energy balance of beam and plasma in the relaxation region: the orange curve shows the difference of energy fluxes through sections limiting the relaxation zone, the blue curve corresponds to the power carried out by fast plasma electrons from the relaxation region. Both dependences are normalized to the beam power, which is introduced into the system through the boundary of the computational domain (*b*)

Результаты измерения энергопотерь пучка и распределения электронов плазмы представлены на рис. 4, *b* и 5. На рис. 4, *b* показана разница потоков энергии, переносимой электронным пучком через границы области релаксации (оранжевая кривая). Энергия, которая выносится электронами плазмы из этой области, показана синей кривой. Электронный пучок при прохождении области релаксации теряет примерно половину своей энергии. Большая часть этой энергии, как можно видеть на рис. 4, *b*, выносится за пределы области релаксации электронами плазмы, ускорившимися турбулентными полями. В однородной плазме инжекция электронного пучка приводит к формированию противоположно направленных надтепловых потоков электронов, покидающих область релаксации, что показано на рис. 5, *a*, где представлено распределение электронов плазмы в пространстве скоростей, построенное по всей вычислительной области в начале расчета (до момента релаксации пучка) и в более поздний момент времени. Суммарный поток энергии, уносимый этими электронами, в среднем примерно соответствует

мощности, которую пучок теряет при взаимодействии с плазмой. Отличие между этими величинами в среднем составляет $\sim 2\%$. Это означает, что на нагрев тепловых электронов тратится около 4–5 % от мощности энергопотерь пучка.

Чтобы определить вклад ускоренных турбулентностью электронов плазмы в процесс ионизации, необходимо определить их долю относительно тепловых электронов плазмы и детали их распределения по скоростям. Как можно видеть на рис. 5, *a*, взаимодействие электронного пучка с плазмой приводит к возбуждению в области релаксации столь интенсивных полей, что часть плазменных электронов, обладавших начальной температурой 20 эВ, ускоряется до энергий порядка энергии пучка. В ходе моделирования в области релаксации пучка диагностировалось распределение электронов плазмы по продольной скорости. Чтобы определить параметры распределения электронов, в полученные данные вписывалась функция распределения вида

$$f_e(v_{\parallel}) = N_{\mathcal{M}} f_{\mathcal{M}}(v_{\parallel}) + N_{\kappa} f_{\kappa}(v_{\parallel}). \quad (6)$$

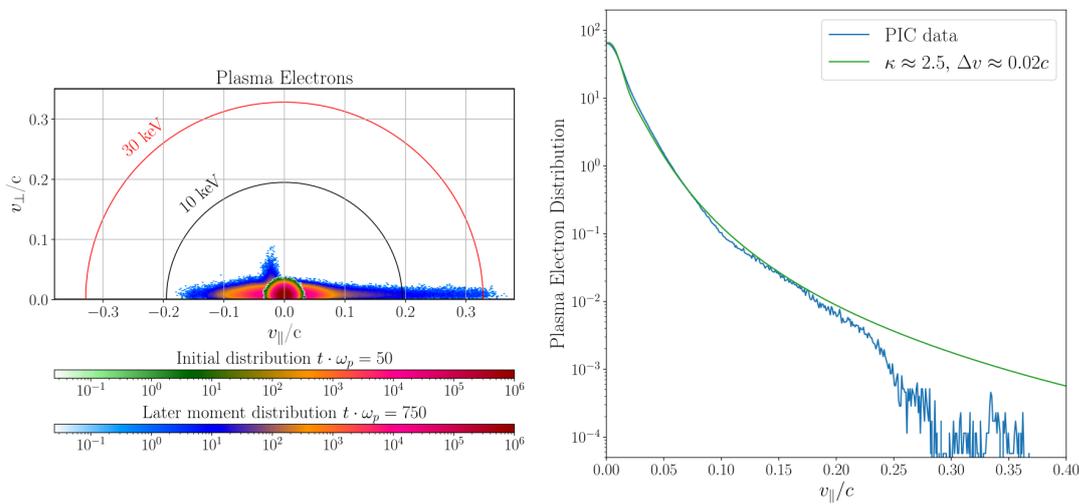


Рис. 5. Результаты измерения энергопотерь пучка и распределения электронов плазмы: *a* – распределение электронов плазмы в пространстве $(v_{\perp}, v_{\parallel})$, измеренное по всей вычислительной области в начальный и более поздний ($t \cdot \omega_p = 750$) моменты времени; *b* – функция распределения электронов плазмы в области релаксации пучка в зависимости от модуля продольной скорости (синяя кривая соответствует данным, полученным в численном моделировании; зеленая – теоретическая функция распределения, представляющая собой сумму максвелловского и каппа-распределений)

Fig. 5. Distribution of plasma electrons in $(v_{\perp}, v_{\parallel})$ -space measured in the whole computational domain both in the initial and later ($t \cdot \omega_p = 750$) moment of time (*a*). Distribution of plasma electrons over the longitudinal velocity module inside the beam relaxation region. The blue curve is given from PIC simulations and the green one is its theoretical approximation by the sum of Maxwellian and kappa-distributions (*b*)

Основная часть электронов плазмы описывается максвелловским распределением $f_{\mathcal{M}}$, с температурой ~ 20 эВ, которая на протяжении всего процесса изменяется незначительно. Поскольку в рассматриваемой области присутствуют плазменные колебания, распределение электронов будет смещено на величину $u(t) = E_0 \sin t$, где под E_0 подразумевается усредненная по области амплитуда электрического поля. Размер диагностируемой области много больше длины волны колебаний, а распределение поля неоднородно по длине, поэтому усредненная амплитуда составляет $E_0 \approx 0,003$ (амплитуда колебаний в этой области меняется на порядок). Ядро распределения плазменных электронов будем аппроксимировать усредненной по периоду колебаний сдвинутой максвелловской функцией:

$$f_{\mathcal{M}}(v_{\parallel}) = \int_0^{2\pi} \exp\left(-\frac{(v_{\parallel}-u(t))^2}{2v_{\parallel}^2}\right) dt. \quad (7)$$

Параметры надтепловой популяции электронов описываются распределением вида

$$f_{\mathcal{H}}(v_{\parallel}) = \frac{v_{\parallel}/\Delta v}{(1+v_{\parallel}^2/\Delta v^2)^{\kappa}}. \quad (8)$$

Максвелловская часть функции распределения нормирована на единицу так, что $\int N_{\mathcal{M}} f_{\mathcal{M}}(v_{\parallel}) dv_{\parallel} = 1$, в таком случае коэффициент $N_{\mathcal{H}}$ с точностью до нормировочных множителей соответствует относительной концентрации быстрых электронов. На основе данных численного моделирования установлено, что надтепловая популяция электронов плазмы, формирующаяся в результате релаксации электронного пучка, описывается функцией (8) с разбросом $\Delta v = 0,02c$ и показателем степени $\kappa = 2,5$ (рис. 5, *b*). Плотность таких электронов оказывается на порядок выше плотности электронного пучка $n_h \approx 10n_b$. Зная мощность, которая идет на нагрев тепловых электронов в области релаксации, а также распределение быстрых частиц, вылетающих из этой области, построим упрощенную модель ионизации в остальном объеме ловушки.

3. Упрощенная модель ионизации во всем объеме ГДЛ

3.1. Описание модели

Для описания более медленной стадии ионизации плазмы во всем объеме ГДЛ будем использовать упрощенный подход, в котором область релаксации пучка будет выступать источником энергии для нагрева тепловых электронов вдоль силовых линий магнитного поля, а также источником быстрых частиц, которые свободно покидают область релаксации и за счет электронного удара ионизируют газ в остальном объеме ловушки. Таким образом, функцию распределения плазменных электронов в каждой пространственной точке будем представлять суммой максвелловского ядра с переменными во времени плотностью и температурой и степенного надтеплого хвоста, распределение которого будем считать неизменным во времени. Динамика плотности тепловых электронов будет описываться уравнением ударной ионизации, в которой участвуют как тепловые, так и надтепловые частицы, а изменение температуры будет определяться из уравнения переноса тепла вдоль силовых линий неоднородного магнитного поля открытой ловушки с классическим коэффициентом электронной теплопроводности, вычисленным С. И. Брагинским в [14].

3.1.1. Уравнение теплопроводности

Для упрощенного описания процесса переноса тепла были использованы следующие допущения:

- плазма остается неподвижной на протяжении всего процесса;
- перенос тепла поперек магнитного поля сильно ослаблен из-за его большой величины, при которой продольный коэффициент электронной теплопроводности на порядки превышает поперечный ($\kappa_{\parallel}^e \gg \kappa_{\perp}^e$):

$$\kappa_{\parallel}^e = 3,16 \frac{n_e T_e \tau_e}{m_e}, \quad \kappa_{\perp}^e = 4,66 \frac{n_e T_e}{m_e \Omega_e^2 \tau_e}; \quad (9)$$

- пренебрегается влиянием магнитного поля на интеграл столкновения Ландау.

При сделанных выше предположениях двумерное уравнение теплопроводности сводится к одномерному в координатах вдоль силовой линии магнитного поля l :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{A}{n_e} \left[\frac{\partial}{\partial l} \left(T^{5/2} \frac{\partial T}{\partial l} \right) - \frac{T^{5/2}}{B} \frac{\partial T}{\partial l} \frac{\partial B}{\partial l} \right] + \frac{2}{3n_e} Q(t), \quad (10)$$

где B – модуль магнитного поля, Q – мощность нагрева единицы объема плазмы, а $A = 3,16 \cdot 2/3$ – постоянный числовой коэффициент.

3.1.2. Ионизация

Уравнение ионизации в нашей модели имеет вид

$$\frac{dn_e}{dt} = (n_0 - n_e) \int_0^\infty \sigma(E) v_E f_e(t, E) dE, \quad (11)$$

где E является энергией электрона, $v_E = \sqrt{2E/m_e}$, а $\sigma(E)$ и f_e – сечение ионизации и функция распределения электронов в плазме.

Подразумевая, что характерные времена изменения физических величин много больше электронного времени столкновений τ_e , будем считать, что в процессе ионизации электроны плазмы рождаются холодными, а затем они мгновенно обмениваются энергией с окружающими электронами. Тогда при наличии надтепловых частиц с функцией распределения f_κ функция распределения электронов f_e может быть представлена в виде

$$f_e(t, E) = f_M + f_\kappa, \quad f_M = (n_e/T_e) \exp(-E/T_e), \quad (12)$$

а мощность нагрева Q в форме

$$Q(t) = Q_{source} - \left(\frac{3}{2} T + I \right) \dot{n}_{plasma} - \frac{3}{2} T \dot{n}_{hot}, \quad (13)$$

где Q_{source} – мощность нагрева вследствие взаимодействия плазмы с электронным пучком, \dot{n}_{plasma} и \dot{n}_{hot} – плотности электронов, родившихся в единицу времени из-за столкновений с плазменными и надтепловыми электронами соответственно.

3.1.3. Решение уравнений теплопроводности и ионизации

Для решения уравнений (10) и (11) был разработан численный параллельный код, в котором процесс ионизации вдоль выделенных силовых линий рассматривается независимо. В каждом расчете исходные уравнения решались на 11 силовых линиях, изображенных на рис. 6, a : от линии, проходящей по центру установки, до линии, касающейся лимитера. Вдоль каждой линии в узлах равномерной пространственной сетки с шагом $dl = 0,656$ см на каждом временном шаге, равном $dl = 9,38 \cdot 10^{-11}$ сек, вычислялась плотность, а затем температура плазмы.

В начальный момент времени вдоль всех линий задавалась плотность нейтрального газа $n_0 = 2,2 \cdot 10^{13}$ см⁻³, плотность затравочной плазмы $n_e = 0,1n_0$, температура электронов $T_e = 0,025$ эВ. Эта же температура поддерживалась на обоих концах системы в течение всех расчетов. Мощность энергопотерь пучка не зависела от времени и задавалась формулой

$$Q_{source} = \frac{P_b}{\pi^{3/2} r_{pl}^2 \Delta z} \exp\left(-\left(\frac{z-z_0}{\Delta z}\right)^2\right), \quad (14)$$

где $r_{pl} = 2,8$ см – радиус силовой линии, проходящей через лимитер, $z_0 = -350,05$ см – координата центра зоны релаксации, $2\Delta z = 5$ см – ее продольная длина, $P_b = 4,05 \cdot 10^{10}$ эрг/с – доля мощности пучка, идущая на нагрев тепловых электронов и составляющая 5 % от его полных энергопотерь. Q_{source} находилась из условия

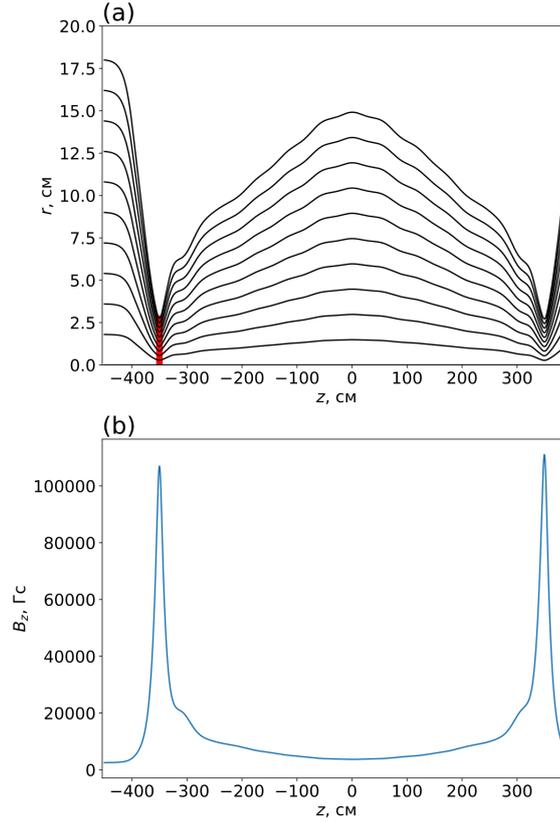


Рис. 6. Силовые линии (a) и продольное магнитное поле B_z (b) вдоль оси установки ГДЛ, использованные в расчетах. Зона релаксации пучка обозначена красным цветом
 Fig. 6. Magnetic field lines (a) and the longitudinal magnetic field B_z (b) along the axis of the GDT facility used in the simulations. The beam relaxation zone is shown by red

$$\int_{all\ plasma} Q_{source} dz 2\pi r dr = P_b. \quad (15)$$

Функция распределения быстрых частиц была задана в виде

$$f_{\kappa}(E) = n_h \frac{2(\kappa-1)}{m_e \Delta v^2} \frac{1}{(1+E/\Delta E)^{\kappa}}. \quad (16)$$

Тут плотность надтепловых электронов вследствие их замагниченности зависит от плотности в пробке n_{plug} и магнитного поля как

$$n_h = n_{plug} \frac{B}{B_{plug}}, \quad (17)$$

где значения параметров $\Delta v = 0,02c$, $\Delta E = m_e \Delta v^2 / 2$, $\kappa = 2,5$, $n_{plug} = 10n_b = 10,4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ взяты из PIC-расчетов. Магнитное поле в моделированиях соответствовало экспериментальному полю в ГДЛ (рис. 6, b).

3.2. Роль тепловых и надтепловых частиц в процессе ионизации

В упрощенной модели считается, что, во-первых, область релаксации расширяется намного быстрее процесса передачи тепла от левой пробки к остальной установке, и, во-вторых, измеренную по всей зоне релаксации функцию распределения надтепловых электронов f_x можно продолжить на всю установку. Чтобы понять относительную роль тепловых и надтепловых частиц в процессе ионизации, было проведено два расчета: в первом моделировании рассчитывался процесс ионизации без участия популяции надтепловых электронов (т. е. $n_h = 0 \text{ см}^{-3}$), во втором же учитывалось ее присутствие.

3.2.1. Роль тепловых частиц

Представленные на рис. 7 результаты моделирования с $n_h = 0 \text{ см}^{-3}$ показывают, что в зоне релаксации происходит нагрев до $T_e \sim 5 \text{ эВ}$, после чего посредством теплопроводности равновесная температура устанавливается вдоль всей установки за 0,6 мс (из рис. 7, с видно, что график температуры в этот момент времени совпадает с графиком в момент $t = 2 \text{ мс}$). Благодаря такому плавному распространению температуры в левой части установки процесс ионизации начинается раньше, чем в правой (рис. 7, d, e, f).

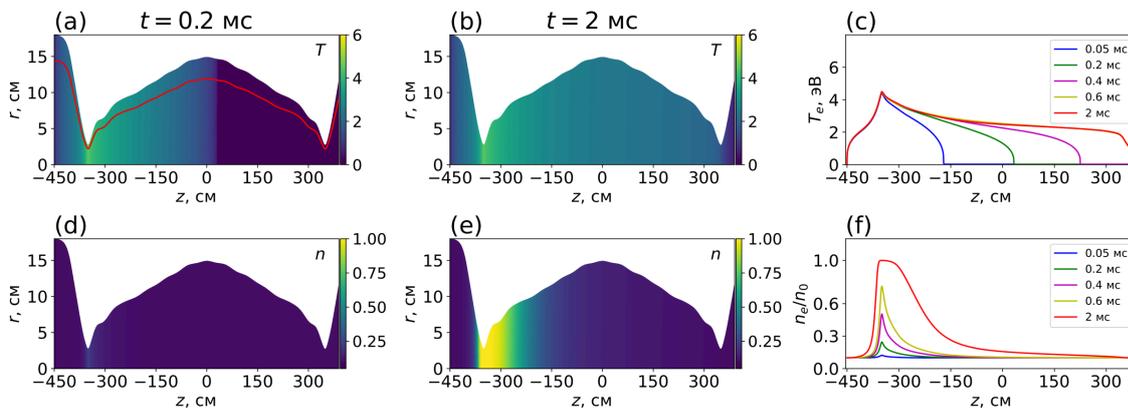


Рис. 7. Результаты моделирования плазмы без ионизации надтепловыми электронами: *a, d* и *b, e* – профили температуры и плотности плазменных электронов в моменты времени $t = 0,2 \text{ мс}$ и $t = 2 \text{ мс}$; *c* и *f* – проекции значений температуры и плотности электронов, измеренных вдоль красной силовой линии магнитного поля (см. *a*), на центральную ось установки в разные моменты времени

Fig. 7. Results of plasma simulations without ionization by superthermal electrons. (a), (d) and (b), (e) Temperature and density profiles for plasma electrons at $t = 0,2 \text{ ms}$ and $t = 2 \text{ ms}$. (c) and (f) Projections of electron temperature and density values measured along the magnetic field line (shown by red in (a)) onto the central axis of the facility in different moments of time

3.2.2. Роль надтепловых частиц

Протекание процесса ионизации меняется при добавлении в систему надтепловых электронов. Как видно из рис. 8, *a–c*, температура распространяется по установке медленнее и, в конце концов, ее фронт не доходит до правой пробки. Причина такого поведения – обильное рождение холодных электронов вследствие столкновений нейтрального газа с надтепловыми электронами, которые забирают энергию у окружающей плазмы (в модели не учитывается обмен энергией между хвостовыми и вновь рожденными электронами). Вследствие этого, в отличие от прошлого моделирования, в данном расчете влияние классической теплопроводности на процесс ионизации оказывается незначительным.

Как видно из рис. 8, *b–f*, основную роль в данном случае играют надтепловые электроны, которые ионизируют плазму сразу вдоль всей установки: в пробках вследствие сжатия пучка этих

частиц данный процесс протекает наиболее интенсивно, в центре установки из-за его расширения – менее интенсивно. Благодаря этому уже за 2 мс степень ионизации плазмы в центре установки превышает 0,5, в то время как в случае отсутствия быстрых частиц она была меньше 0,2.

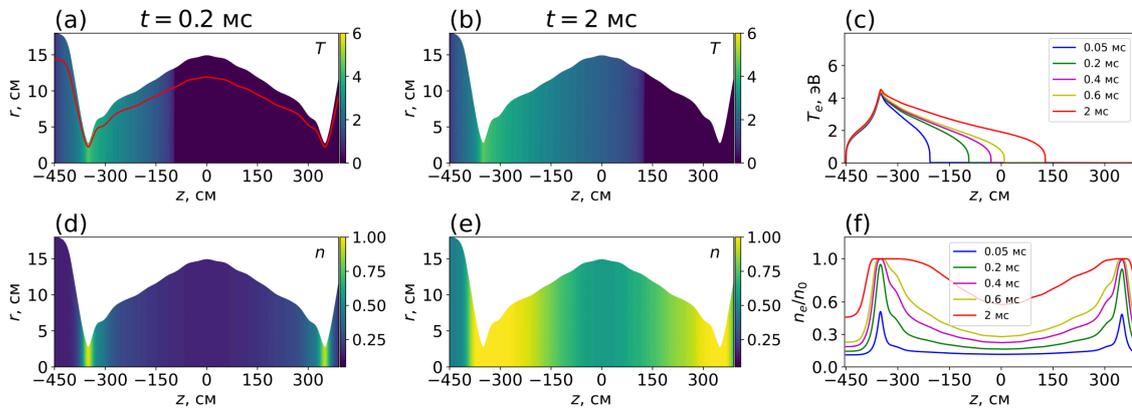


Рис. 8. Результаты моделирования плазмы с учетом ионизации надтепловыми электронами: *a*, *d* и *b*, *e* – профили температуры и плотности плазменных электронов в моменты времени $t = 0,2$ мс и $t = 2$ мс; *c* и *f* – проекции значений температуры и плотности электронов, измеренных вдоль красной силовой линии магнитного поля (см. *a*), на центральную ось установки в разные моменты времени

Fig. 8. Results of plasma simulations accounting for ionization by superthermal electrons. (*a*), (*d*) and (*b*), (*e*) Temperature and density profiles for plasma electrons at $t = 0,2$ ms and $t = 2$ ms. (*c*) and (*f*) Projections of electron temperature and density values measured along the magnetic field line (shown by red in *a*) onto the central axis of the facility in different moments of time.

3.3. Сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными ГДЛ

Чтобы сравнить результаты моделирований с показаниями тройного ленгмюровского зонда, измеряющего плотность в точке с координатами ($r = 6$ см, $z = -293$ см), и показаниями дисперсионного интерферометра, измеряющего линейную плотность в центральном сечении плазменного столба (см. [7]), из расчетов были взяты зависимости этих величин от времени в тех же местах расчетной области (рис. 9).

Из рис. 9 видно, что вычисленные в модели локальная плотность в месте расположения зонда и линейная плотность электронов в центре ловушки имеют те же характерные времена роста, которые наблюдаются в эксперименте, однако количественного согласия с данными сразу двух диагностик не достигается. Вблизи входной пробки при $z = -293$ см ионизация идет быстрее, чем нужно, а в центральной части расчетной области, несмотря на значительное увеличение скорости ионизации по сравнению с моделированием без быстрых электронов, ее величины не хватает для объяснения экспериментальных данных.

Основной причиной такого несоответствия, на наш взгляд, является довольно низкая температура плазмы, которая ограничивается достаточно большими потерями тепла на стенку за счет классической электронной теплопроводности. Фактически температура электронов в численной модели не превышает 5 эВ, что существенно ниже показаний тройного ленгмюровского зонда (10–20 эВ). В действительности хорошо известно, что электронные потери тепла в пробочной ловушке ГДЛ значительно снижаются из-за формирования в расширителе скачка амбиполярного потенциала, что должно повышать температуру удерживаемой плазмы. Однако для корректного учета данного эффекта требуется гораздо более детальное кинетическое моделирование электронов.

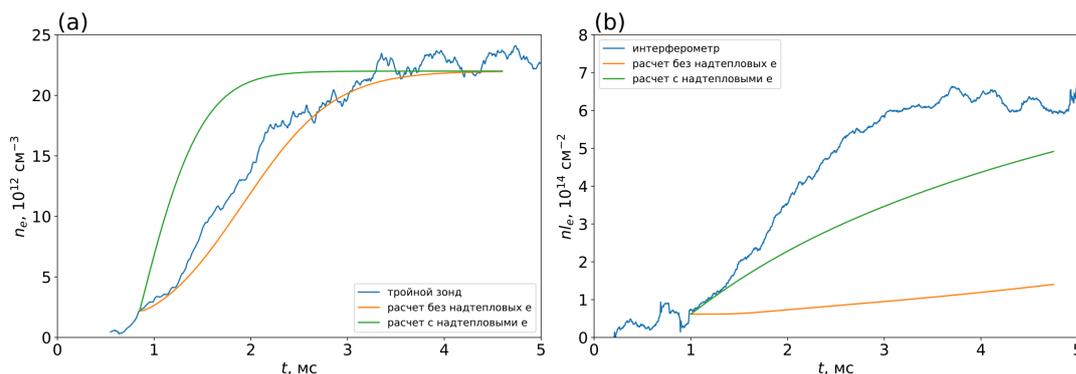


Рис. 9. Сравнение динамики плотности плазмы $n_e(t)$ (a), измеренной тройным ленгмюровским зондом, и линейной плотности $nl_e(t)$ (b), измеренной дисперсионным интерферометром в экспериментах на ГДЛ, с предсказаниями упрощенной модели ионизации

Fig. 9. Comparison of both plasma density dynamics $n_e(t)$ measured by a triple Langmuir probe (a) and linear density history $nl_e(t)$ measured by a dispersive interferometer (b) in GDT experiments with the predictions of our simplified ionization model

Заключение

В работе исследован возможный механизм развития пучково-плазменного разряда в открытой ловушке ГДЛ. Для подтверждения предположения о том, что плазменные колебания действительно обеспечивают радиальное движение фронта ионизации в области релаксации пучка, проведены PIC-расчеты, в которых наряду с процессами возбуждения и нелинейной эволюции плазменных колебаний учитываются также и процессы ударной ионизации электронами, осциллирующими в поле этих колебаний. Показано, что проникающие на периферию плазмы колебания действительно способны создать условия для ионизации находящегося там газа, при этом процесс расширения зоны турбулентности не является настолько быстрым, чтобы его динамику можно было не учитывать при описании развития разряда в остальном объеме ловушки. Кроме того, с помощью PIC-модели удалось определить, какую часть от инжектируемой мощности пучок оставляет в плазме и в какой пропорции эти энергопотери распределяются между тепловыми и надтепловыми электронами. Полученная информация о функции распределения ускоренных частиц затем используется для оценки их вклада в ионизацию в рамках более простой модели.

Для ответа на вопрос, как происходит ионизация газа в остальном объеме ловушки, создана упрощенная модель, в которой функция распределения плазменных электронов в каждой точке пространства представляется в виде суммы максвелловского ядра (тепловые электроны) и надтеплого хвоста. Область релаксации пучка представляет собой источник энергии для нагрева тепловых электронов и источник генерации быстрых частиц. Плотность тепловых электронов вне области релаксации растет благодаря ударной ионизации всеми частицами, а их температура определяется процессами переноса тепла из области источника за счет продольной электронной теплопроводности. Показано, что при том уровне генерации быстрых частиц, который наблюдается в PIC-расчетах, происходит заметное ускорение процесса ионизации по сравнению со случаем, когда учитываются только тепловые частицы. Проведено сравнение модельных расчетов динамики нарастания плотности во всем объеме ловушки с экспериментально измеренной локальной плотностью в месте расположения зонда и линейной плотности в центральном сечении ловушки. Показано, что модель в целом правильно предсказывает временные масштабы процессов, однако для получения количественного согласия с данными сразу двух экспериментальных диагностик требуется уточнение модели. В частности, необходимо учесть влияние амбиполярного потенциала в расширителе на электронные потери тепла,

а также изучить зависимость спектра быстрых частиц от радиуса за пределами области, по которой распространяется пучок. Это должно обеспечить более реалистичную экстраполяцию этого распределения на плазму большого сечения и создать условия для исследования влияния неоднородного профиля мощности нагрева на динамику разряда в ловушке.

Список литературы

1. Харченко И. Ф., Файнберг Я. Б., Николаев Р. М., Корнилов Е. А., Луценко Е. И., Педенко Н. С. Взаимодействие пучка электронов с плазмой в магнитном поле // Ядерный синтез: Дополнение. 1962. Ч. 3.
2. Smullin L. D., Getty W. D. Generation of a Hot, Dense Plasma by a Collective Beam-Plasma Interaction // Phys. Rev. Lett. 1962. Vol. 9. P. 3. DOI: 10.1103/PhysRevLett.9.3
3. Getty W. D., Smullin L. D. Beam-Plasma Discharge: Buildup of Oscillations // J. Appl. Phys. 1963. Vol. 34. P. 3421-3429. DOI: 10.1063/1.1729220
4. Alexeff I., Neidigh R. V., Peed W. F., Shipley E. D. and Harris E. G. Hot-Electron Plasma by Beam-Plasma Interaction // Phys. Rev. Lett. 1963. Vol. 10. P. 273. DOI: 10.1103/PhysRevLett.10.273
5. Закатов Л. П., Плахов А. Г., Рютов Д. Д., Шапкин В. В. Высокотемпературная электронная компонента в пучково-плазменном взаимодействии // ЖЭТФ. 1968. Т. 54.
6. Ryutov D. D. Contribution to the theory of beam heating of a plasma in an open trap // Nucl. Fusion. 1969. Vol. 9. P. 297. DOI: 10.1088/0029-5515/9/4/003
7. Soldatkina E. I., Pinzhenin E. I., Korobeynikova O. A., Maximov V. V., Yakovlev D. V., Solomakhin A. L., Savkin V. Ya., Kolesnichenko K. S., Ivanov A. A., Trunev Yu. A., Vosko-boynikov R. V., Shulzhenko G. I., Annenkov V. V., Volchok E. P., Timofeev I. V. and Bagryansky P. A. Electron beam-plasma discharge in GDT mirror trap: experiments on plasma start-up with electron gun // Nucl. Fusion. 2022. Vol. 62. P. 066034. DOI: 10.1088/1741-4326/ac3be3
8. Timofeev I. V., Annenkov V. V., Volchok E. P. and Glinskiy V. V. Electron beam-plasma discharge in GDT mirror trap: particle-in-cell simulations // Nucl. Fusion. 2022. Vol. 62. P. 066033. DOI: 10.1088/1741-4326/ac3cdc
9. Boris J. P. Relativistic plasma simulation-optimization of a hybrid code // Proc. of 4th Conf. on Numerical Simulations of Plasmas (Washington, DC, USA 2–3 November 1970). Washington, DC, USA: Naval Research Laboratory, 1970. P. 3–67. URL: <https://books.google.ru/books?id=zqxSAQAACAAJ>
10. Yee K. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media // IEEE Transactions on Antennas and Propagation. 1966. Vol. 14. P. 302. DOI: 10.1109/TAP.1966.1138693
11. Esirkepov T. Zh. Exact charge conservation scheme for Particle-in-Cell simulation with an arbitrary form-factor // Computer Physics Communications. 2001. Vol. 135. P. 144. DOI: 10.1016/S0010-4655(00)00228-9
12. Annenkov V. V., Berendeev E. A., Timofeev I. V., Volchok E. P. High-power terahertz emission from a plasma penetrated by counterstreaming different-size electron beams // Phys. Plasmas. 2018. Vol. 25. P. 113110. DOI: 10.1063/1.5048245
13. Kim Y.-K. and Rudd M. E. Binary-encounter-dipole model for electron-impact ionization // Phys. Rev. A. 1994. Vol. 50. P. 3954. DOI: 10.1103/PhysRevA.50.3954
14. Брагинский С. И. Явления переноса в плазме // Вопросы теории плазмы / Под ред. М. А. Леонтовича. М.: Гос-атомиздат, 1963. Вып. 1. 183 с.

References

1. **Kharchenko I. F. et al.** Nucl. Fusion Suppl. 3, 1101 (1962). (in Russ.)
2. **Smullin L. D. and Getty W. D.** Generation of a Hot, Dense Plasma by a Collective Beam-Plasma Interaction. *Phys. Rev. Lett.* 9, 3 (1962); DOI: 10.1103/PhysRevLett.9.3
3. **Getty W. D. and Smullin L. D.** Beam-Plasma Discharge: Buildup of Oscillations. *J. Appl. Phys.* 34, 3421 (1963); DOI: 10.1063/1.1729220
4. **Alexeff I., Neidigh R. V., Peed W. F., Shipley E. D. and Harris E. G.** Hot-Electron Plasma by Beam-Plasma Interaction. *Phys. Rev. Lett.* 10, 273 (1963); DOI: 10.1103/PhysRevLett.10.273
5. **Zakatov L. P. et al.** High-temperature electron component in beam plasma interaction. *Sov. Phys. JETP* 27 583 (1968) (in Russ.)
6. **Ryutov D. D.** Contribution to the theory of beam heating of a plasma in an open trap. *Nucl. Fusion* 9, 297 (1969); DOI: 10.1088/0029-5515/9/4/003
7. **Soldatkina E. I., Pinzhenin E. I., Korobeynikova O. A., Maximov V. V., Yakovlev D. V., Solomakhin A. L., Savkin V. Ya., Kolesnichenko K. S., Ivanov A. A., Trunev Yu. A., Voskoboynikov R. V., Shulzhenko G. I., Annenkov V. V., Volchok E. P., Timofeev I. V. and Bagryansky P. A.** Electron beam-plasma discharge in GDT mirror trap: experiments on plasma start-up with electron gun. *Nucl. Fusion* 62, 066034 (2022); DOI: 10.1088/1741-4326/ac3be3
8. **Timofeev I. V., Annenkov V. V., Volchok E. P. and Glinskiy V. V.** Electron beam-plasma discharge in GDT mirror trap: particle-in-cell simulations. *Nucl. Fusion* 62, 066033 (2022); DOI: 10.1088/1741-4326/ac3cdc
9. **Boris J. P.** Relativistic plasma simulation-optimization of a hybrid code, *Proc. of 4th Conf. on Numerical Simulations of Plasmas* (Washington, DC, USA 2–3 November 1970) (Washington, DC, USA: Naval Research Laboratory) pp. 3–67 (<https://books.google.ru/books?id=zqxSAQAACAAJ>).
10. **Yee K.** Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* 14, 302 (1966); DOI: 10.1109/TAP.1966.1138693
11. **Esirkepov T. Zh.** Exact charge conservation scheme for Particle-in-Cell simulation with an arbitrary form-factor. *Computer Physics Communications* 135, 144 (2001); DOI: 10.1016/S0010-4655(00)00228-9
12. **Annenkov V. V., Berendeev E. A., Timofeev I. V., Volchok E. P.** High-power terahertz emission from a plasma penetrated by counterstreaming different-size electron beams. *Phys. Plasmas* 25, 113110 (2018); DOI: 10.1063/1.5048245
13. **Kim Y.-K. and Rudd M. E.** Binary-encounter-dipole model for electron-impact ionization. *Phys. Rev. A* 50, 3954 (1994); DOI: 10.1103/PhysRevA.50.3954
14. **Braginskiy S. I.** Transfer phenomena in plasma. *Collect.: Plasma theory issues*. Moscow, Atomizdat, 1963, vol. 1, p. 183.

Информация об авторах

Владимир Владимирович Глинский, аспирант

Евгения Павловна Волчок, лаборант-исследователь

Владимир Вадимович Анненков, кандидат физико-математических наук

Игорь Валериевич Тимофеев, доктор физико-математических наук

Information about the Authors**Vladimir V. Glinskiy**, Graduate Student**Evgeniia P. Volchok**, Research Assistant**Vladimir V. Annenkov**, PhD (Physics and Mathematics)**Igor V. Timofeev**, Doctor of Science (Physics and Mathematics)

*Статья поступила в редакцию 22.09.2023; одобрена после рецензирования 28.09.2023;
принята к публикации 28.09.2023*

*The article was submitted 22.09.2023; approved after reviewing 28.09.2023;
accepted for publication on 28.09.2023*

Научная статья

УДК 53; 536.6; 544.236.2

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-61-70

Температурная зависимость удельной теплоемкости стекол, полученных на основе $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$

Давлатназар Сохибназарович Кучакшоев¹

Александр Гулямович Джабаров²

Алимахмад Холов³

¹⁻³Физико-технический институт им. С. У. Умарова НАНТ
Душанбе, Республика Таджикистан

¹k.davlat@mail.ru

²jabarovag@rambler.ru

³alikhlov@mail.ru

Аннотация

В данной работе экспериментально в процессе охлаждения исследована температурная зависимость удельной теплоемкости стекол, полученных на основе соединения $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$ с разной концентрацией тетрабората натрия и оксида висмута в исходной смеси. Экспериментально показано, что с изменением концентрации исходных веществ меняется удельная теплоемкость образцов, наблюдается сдвиг максимумов в сторону низких температур с увеличением концентрации оксида висмута. Дана физическая интерпретация природы максимума на температурной зависимости удельной теплоемкости.

Ключевые слова

удельная теплоемкость, стекло, температура, скорость охлаждения

Для цитирования

Кучакшоев Д. С., Джабаров А. Г., Холов А. Температурная зависимость удельной теплоемкости стекол, полученных на основе $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$ // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 61–70. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-61-70

Temperature Dependence of the Specific Heat Capacity Glasses Produced Based on $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$

Davlatnazar S. Kuchakshoev¹, Alexander G. Dzhabarov²,
Alimakhmad Kholov³

¹⁻³S. U. Umarov Physical-Technical Institute of the National Academy of Sciences of Tajikistan,
Dushanbe, Republic of Tajikistan

¹k.davlat@mail.ru

²jabarovag@rambler.ru

³alikhholov@mail.ru

Annotation

In this work, the temperature dependence of the specific heat capacity of glasses obtained on the basis of the $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$ compound with different concentrations of sodium tetraborate and bismuth oxide in the initial mixture was studied experimentally during cooling. It has been experimentally shown that with a change in the concentration of the initial substances, the specific heat capacity of the sample's changes, and a shift of the maxima towards low temperatures is observed with an increase in the concentration of bismuth oxide. A physical interpretation of the nature of the maximum on the temperature dependence of the specific heat is given.

Keywords

specific heat capacity, glass, temperature, cooling rate

For citation

Kuchakshoev D. S., Dzhabarov A. G., Kholov A. Temperature dependence of the specific heat capacity glasses produced based on $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 61–70 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-61-70

Введение

Стеклообразное состояние вещества открывает широкие технологические возможности для получения разнообразных материалов и изделий. Стекло и изделия на его основе находят широкое применение во многих областях народного хозяйства. Стекло превратилось в незаменимый материал строительного и конструкционного назначения, прочно утвердилось в элементах конструкций транспортной, электронной, атомной, ракетной и других отраслей техники, стало неотъемлемой частью бытовых потребностей населения [1]. Стекла стали заменять, в частности, и кристаллы.

В этом ряду ученые исследуют свойства стекол разных составов. В том числе хорошо изученные соединения боратов висмута, которые обладают высокими значениями показателя преломления, широкой областью прозрачности в видимом и ИК-диапазонах. Это позволяет создавать на их основе кристаллические материалы и стекла для нелинейной оптики, лазерной и оптоволоконной техники, что делает их весьма перспективными для различных приложений нелинейной оптики [2–4]. Так, стекло на основе соединений B_2O_3 характеризуется широкими областями стеклообразования [5], что позволяет изменять состав и свойства стекол в широких пределах.

Существует мало литературных источников по физико-химическим свойствам соединений $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 + \text{Bi}_2\text{O}_3$, в которых кроме бора и висмута важную роль играет еще и натрий. Методом ДТА и РФА была изучена вероятность появления тройного соединения, содержащее В, Вi и Na [6; 7]. Обнаружено, что в широком диапазоне концентраций получаются многофазные соединения различного состава, включающего как кристаллические, так и аморфные фазы. Однако среди различных по составу и структуре компонент кристаллической фазы не обнаружено тройных соединений, содержащих В, Вi и Na. Тем не менее в интервале мольных концентраций Bi_2O_3 менее 30 % получены качественные прозрачные стекла [8], однородные по составу и структуре, оптические и электрические свойства которых зависят от состава и технологических факторов.

Материалы и методы

Для получения стекол были использованы следующие исходные компоненты: тетраборат натрия ($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$, ЧДА, ГОСТ 4199-66) и оксида висмута (Bi_2O_3 , ХЧ, ГОСТ 10216-75). С целью удаления воды исходные вещества прокаливались в муфельной печи в течение двух часов при температуре 573 К в среде атмосферного воздуха. Далее для получения стекол, содержащих В, Bi и Na, к тетраборату натрия добавлялось необходимое соотношение Bi_2O_3 (10, 20 и 30 %), т. е. добавлены те концентрационные соотношения оксида висмута, при которых получают прозрачные стекла. Так как при добавке выше 30 % оксида висмута к тетраборату натрия получают мутные (не прозрачные) образцы. Полученная смесь размалывалась в шаровой мельнице в течение часа с целью гомогенизации состава и плавилось при 1050 К в платиновом тигле, с выдержкой в течение 7 часов, после чего расплав быстро охлаждался в керамическом тигле. Полученные образцы имели цилиндрические формы с размерами 10–12 мм в диаметре и 2–10 мм в толщине [8].

Теплоемкость определялась на установке, описанной в работе [9], при непрерывном свободном охлаждении расплава в окружающую среду методом сравнения с удельной теплоемкостью эталона, в качестве которого использовался пустой платиновый тигель с крышкой, теплоемкость которого во всем измеряемом интервале температур известна [10]. Измерения проводились в условиях непрерывного свободного охлаждения образцов в окружающую среду, которые соответствовали условиям охлаждения расплава при получении образцов от расплава до комнатной температуры.

Результаты и обсуждение

Целью данной работы является измерение температурной зависимости удельной теплоемкости стекла на основе $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ методом сравнения при непрерывном свободном охлаждении в окружающую среду от температур расплава до температур, близких к комнатным. В случае получения стеклообразных образцов на основе соединений $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ содержание Na по отношению к В для всех концентраций не меняется и равно $\frac{1}{2}$.

Известно, что одно из понятий, характеризующих тепловые свойства тел, которую используют в термодинамике, – это теплоемкость. Простого математического соотношения, которое могло бы выражать зависимость теплоемкости твердого тела от температуры в широких ее пределах, не имеется. На основе квантово-механических представлений о строении материи наиболее точные выражения выведены в виде формул или функций Дебая, Эйнштейна и Нернста – Линдемана, но при высоких температурах теплоемкость веществ с более сложной структурой отклоняется от теории Дебая. Одним из распространенных методов, который позволяет установить зависимость теплоемкости от температуры ($c_p = f(T)$) в области высоких температур, является метод сравнения скоростей охлаждения двух образцов (исследуемого и эталонного) по закону охлаждения Ньютона – Рихмана. В связи с этим, как отмечено в работе [9], чтобы проследить молекулярные процессы, протекающие при изготовлении образцов стекол в процессе охлаждения расплава, был проведен ряд экспериментов по определению удельной теплоемкости в условиях, приближенных к условиям получения образцов. Удельную теплоемкость рассчитывали по известной формуле [9], полученной на основе уравнения Ньютона – Рихмана. Сначала определяли удельную теплоемкость тигля с образцом $c_{p,x}$, а затем по формуле $c_{p,s} = \frac{c_{p,x} \cdot m_x - c_{p,t} \cdot m_t}{m_s}$ рассчитывали удельную теплоемкость образца, где m_s ; m_t ; m_x – массы образца, пустого платинового тигля, платинового тигля с образцом, а $c_{p,s}$; $c_{p,t}$; $c_{p,x}$ – удельные теплоемкости образца, пустого платинового тигля, платинового тигля с образцом соответственно.

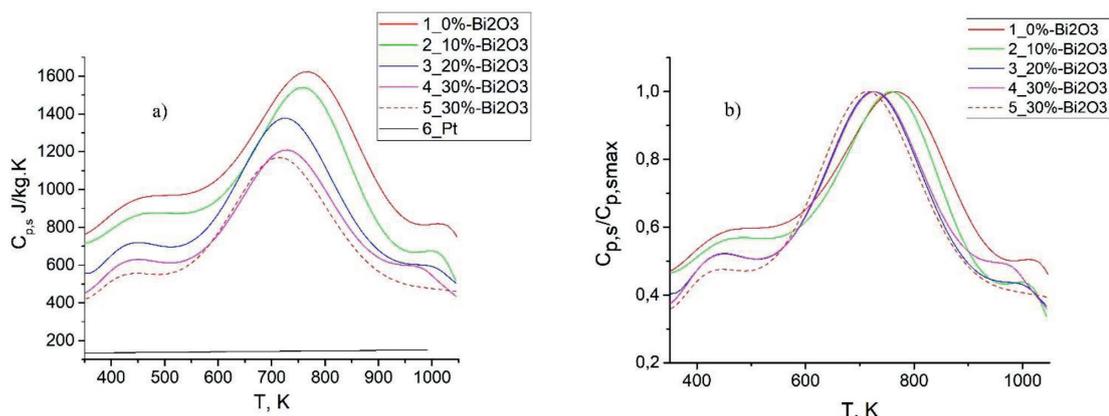


Рис. 1. Температурная зависимость удельной теплоемкости стекол состава $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$: a – в координатах $c_{p,s} - T$; b – в координатах $c_{p,s}/c_{p,s,max} - T$

Fig. 1. Temperature dependence of the specific heat capacity of glasses of composition $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$: a – in coordinates $c_{p,s} - T$; b – in coordinates $c_{p,s}/c_{p,s,max} - T$

Рассчитанные удельные теплоемкости образцов стекол состава $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ для разных мольных концентраций α представлены на рис. 1. Мольная концентрация $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3$ в образцах, полученных с длительной выдержкой расплава, равна: 1–0; 2–10; 3–20; 5–30 %. Образец 4 по составу соответствует образцу 5, но получен без длительной выдержки расплава. Видно, что зависимости $c_p(T)$ для всех образцов проходят через максимум. В максимуме удельная теплоемкость уменьшается при увеличении мольной концентрации Bi_2O_3 от 0 до 30 % и изменяется от 1650 Дж/(кг К) для $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ до 1200 Дж/(кг К) для стекол с 30 % добавкой Bi_2O_3 . Положение максимума также меняется, что хорошо видно на рис. 1, b и отражено в табл. 1. С ростом концентрации Bi_2O_3 максимум $c_p(T)$ сдвигается в сторону низких температур от 770 К для стекла $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ до 710 К для стекла $3 \cdot \text{Bi}_2\text{O}_3 + 7 \cdot \text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$.

Таблица 1

Сдвиг максимума температуры и теплоемкости образцов на основе соединения $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$

Table 1

Shift of maximum temperature and heat capacity of samples based on $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ compounds

Образец	Bi_2O_3 , %	Максимум	
		T , К	c_p , Дж/(кг·К)
1	0	770	1623
2	10	760	1541
3	20	720	1376
4	30	729	1209
5	30	710	1169

Согласно данным табл. 1 и построенных на их основе графиков, показанных на рис. 2, наблюдается уменьшение удельной теплоемкости с ростом концентрации Bi_2O_3 .

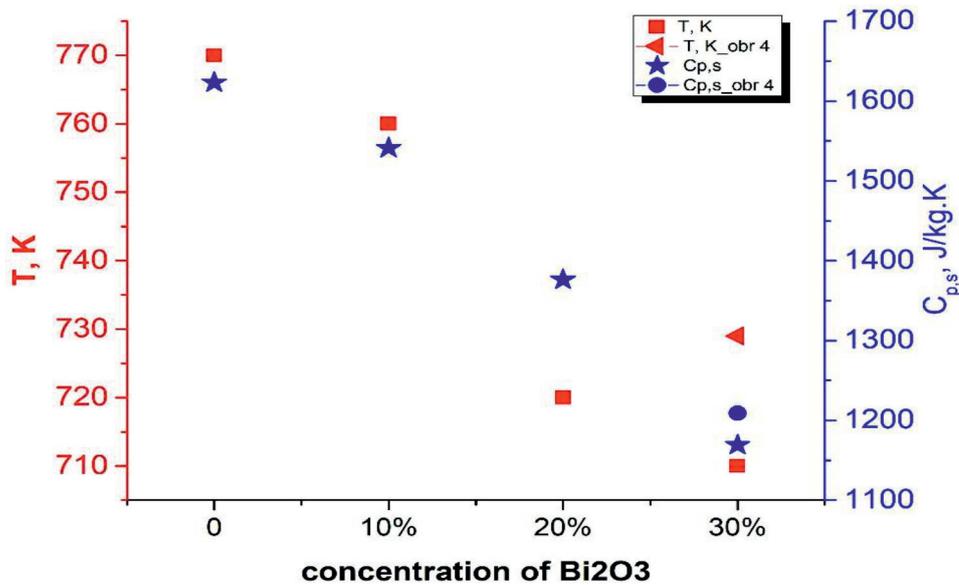


Рис. 2. Изменение температуры максимума T_m и удельная теплоемкости $c_p(T)$ образцов $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3+(1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ с ростом концентрации Bi_2O_3

Fig. 2. Changes in the maximum temperature T_m and specific heat capacity $c_p(T)$ of the $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3+(1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ samples with increasing Bi_2O_3 concentration

Образец 4 имеет такой же состав, как и образец 5, но отличается тем, что получен быстрым охлаждением расплава сразу после достижения его температуры 1050 K, тогда как образец 5 получен быстрым охлаждением расплава после длительной выдержки (> 10 часов) при той же температуре. Исследования с помощью электронного сканирующего микроскопа показали (рис. 3), что структура образца 5 (см. рис. 3, *d*) однородна, распределение Na, B и Bi также распределены по образцу равномерно. На картинках видно, как меняются образцы в зависимости от концентрации Bi_2O_3 в их составе. Образец 4 (см. рис. 3, *e*) имеет мозаичную структуру, в которой Na, B и Bi распределены неравномерно: существуют области с повышенным содержанием B и с повышенным содержанием Bi.

В областях с повышенным содержанием B помимо Bi присутствует Na, концентрация которого больше, чем в областях с повышенным содержанием Bi. Расплавы всех образцов обладают высокой вязкостью, что обуславливает большие времена релаксации процесса молекулярной перегруппировки, образования молекулярной пространственной сетки, характерной для боратных стекол [11].

Рентгенофазовый анализ этих образцов показал, что данные образцы аморфные и имеют малую долю кристаллических фаз (рис. 4, *a, b*). С целью определения доли кристаллической и аморфной фазы образцов была использована программа Search-Match с дополнительным привлечением программы OriginLab 2015. Содержание аморфной фазы χ_{am} (содержание кристаллической фазы $\chi_{cr} = 1 - \chi_{am}$) в образцах определяли по отношению площади фона к площади спектра, которые рассчитывали с помощью программы OriginLab. Полученные дифрактограммы исследованных образцов приведены на рис. 4, *a*.

Как видно из рис. 4, дифрактограммы всех образцов представляют собой спектры с широкими размытыми дифракционными максимумами, что свидетельствует о существовании большой аморфной фазы этих образцов. Кристаллические дифракционные пики можно различать только на уровне фона.

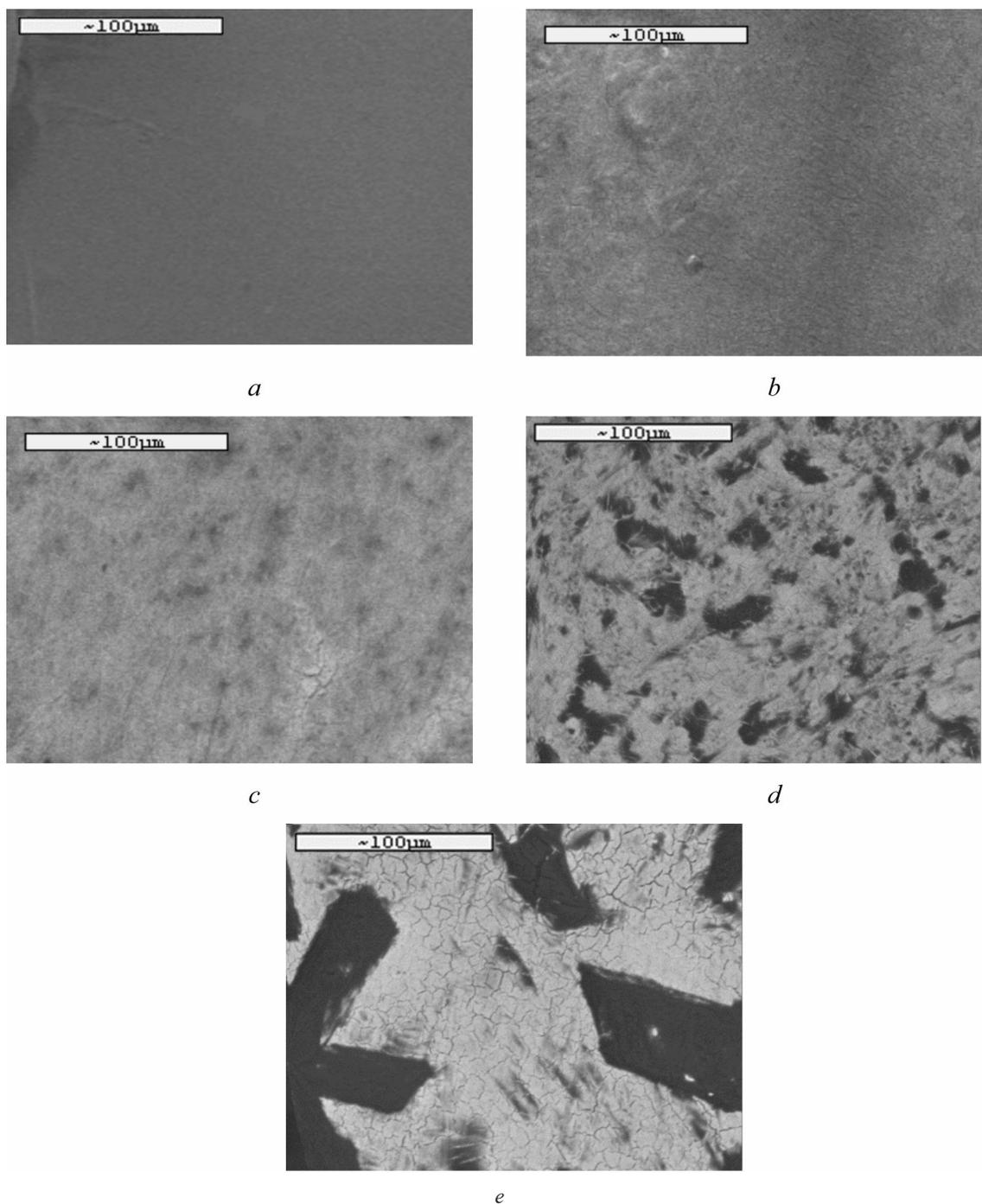


Рис. 3. Изображения исследованных образцов в отраженных электронах BSE, полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа при разных концентрациях Bi_2O_3 в составе: $a - 0\%$; $b - 10\%$; $c - 20\%$; $d - 30\%$; $e - 30\%$ (без длительной выдержки в расплаве)

Fig. 3. Images of experimental samples in reflected BSE electrons, obtained by scanning a microscope at different concentrations of Bi_2O_3 in the composition: $a - 0\%$; $b - 10\%$; $c - 20\%$; $d - 30\%$; $e - 30\%$ (excluding long exposure)

Расчеты содержания аморфной фазы образцов, приведенные в табл. 2, показывают, что при малой концентрации Bi_2O_3 наблюдается уменьшение содержание кристаллической фазы, но увеличение концентрации оксида висмута приводит к росту кристаллической фазы.

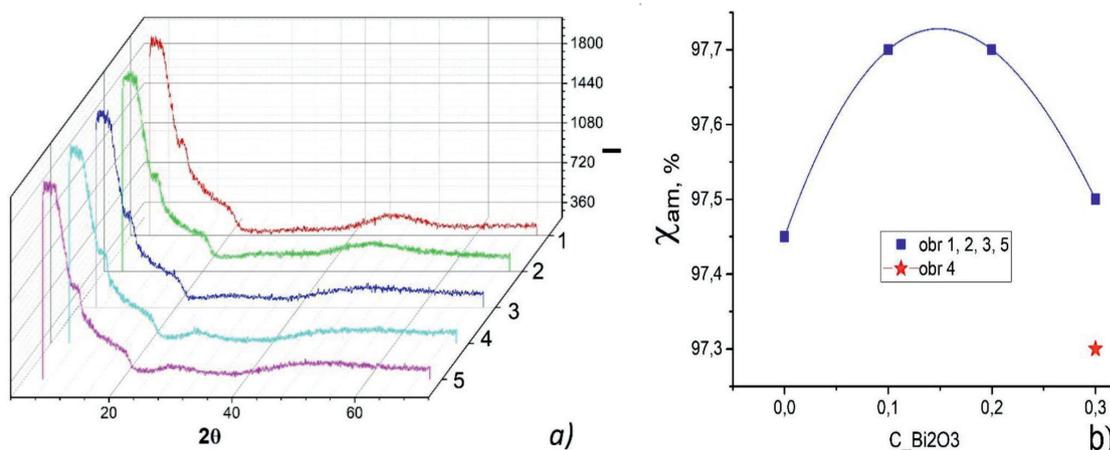


Рис. 4. Рентгенофазовый анализ стекол состава $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ в зависимости от концентрации Bi_2O_3 в образцах: 1 – 0; 2 – 10; 3 – 20; 4, 5 – 30 % (a); зависимость изменения содержания аморфной фазы от концентрации Bi_2O_3 в образцах (b)

Fig. 4. X-ray phase analysis of glasses with the composition $\alpha\text{Bi}_2\text{O}_3 + (1-\alpha)\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ depending on the concentration of Bi_2O_3 in the samples: 1 – 0; 2 – 10; 3 – 20; 4, 5 – 30 % (a); changes in the content of the amorphous concentration of Bi_2O_3 in the samples (b)

Таблица 2

Содержание аморфной фазы образцов при разной концентрации Bi_2O_3 в исходной смеси

Table 2

The content of the amorphous phases of the samples at different concentrations of Bi_2O_3 in the initial mixture

Образец	Bi_2O_3 , %	Аморфная фаза, %
1	0	97,45
2	10	97,7
3	20	97,7
4	30	97,3
5	30	97,5

Наблюдаемая неоднородность структуры и распределения Na, B и Bi в образце 4 является следствием дефицита времени для перестройки структуры из-за больших времен релаксации. Выдержка расплава в течение длительного времени (~10 часов) приводит к равномерному распределению химических элементов, образованию новых связей и молекулярной структуры в целом. В образце 4 с незавершенным структурообразованием величина максимума удельной теплоемкости и его температура несколько выше, чем для образца 5 с однородной структурой. Это может быть связано с тем, что в силу незавершенности процессов структурообразования в образце 4 присутствует значительное количество атомов Na, которые либо свободны, либо слабо связаны с образующейся молекулярной сеткой стеклообразных образцов. О существовании свободных атомов Na свидетельствует обнаруженный нами факт наличия спектральных полос в спектрах пропускания в видимой области, характерных для дуплетных переходов атомов Na [12; 13] и которые не наблюдаются в спектрах образца 5. В стеклообразном состоянии (вблизи температуры стеклования, температуры максимум, показанной в табл. 1) подвижность

таких атомов оказывается размороженной, что обуславливает их дополнительный вклад в процесс теплопереноса, в величину теплоемкости.

Природа основного максимума в исследованных материалах связана с молекулярными процессами стеклообразования при охлаждении расплава до низких температур, характер которого обусловлен особенностями молекулярной подвижности в широком интервале температур и скоростью отбора энергии на контакте тигля с образцом и окружающей средой (воздух).

Известно, что расплав стекол исследованных веществ в том числе имеет высокую вязкость. Характер молекулярной подвижности на стадии размягчения носит кластерный характер, который сохраняется вплоть до температур плавления [14]. Такому характеру молекулярной подвижности присущи большие времена релаксации, определяющие скорость изменений молекулярной структуры. При больших скоростях охлаждения на начальной стадии (~2000 К/мин) и больших временах релаксации кластерный механизм подвижности оказывается «замороженным», не вносит вклад в измеряемую удельную теплоемкость, что обуславливает ее значения на уровне значений при низких температурах (близких к комнатной), которые определяются локальной колебательной молекулярной подвижностью.

Заключение

На основе проведенных исследований следует отметить, что в процессе охлаждения расплава его скорость экспоненциально уменьшается, что приводит к динамическому «размораживанию» кластерной молекулярной подвижности, вследствие чего расчетная (кажущаяся) удельная теплоемкость начинает расти. Рост удельной теплоемкости продолжается до температуры максимума (температуры стеклования). При дальнейшем охлаждении, когда температура образца оказывается меньше температуры стеклования, времена релаксации значительно возрастают, а скорость охлаждения падает (до десятков – сотен К/мин), рост удельной теплоемкости сменяется на ее уменьшение – наступает процесс структурного стеклования. Все молекулярные процессы при охлаждении образцов (от расплава до твердого состояния) протекают в неравновесных условиях, в силу чего значения рассчитанной (кажущейся) удельной теплоемкости несколько отличаются от значений, приведенных в работе [15], – наши температурные зависимости удельной теплоемкости более пологи и более растянуты по температуре.

Список литературы

1. **Гулоян Ю. А.** Технология стекла и стеклоизделий: Учебник для средних специальных учебных заведений, систем профессионально-технического и производственного обучения. Владимир: Транзит-Икс, 2003. 480 с.
2. **Hasu H., Ito T., Hase H., et al.** Third-Order Optical NonLinearity of Bi_2O_3 -Based Glasses // *J. Non-Cryst. Solids*. 1996. Vol. 204, no. 1. P. 78–82.
3. **Becker P.** Thermal and Optical Properties of Glasses of the System Bi_2O_3 - B_2O_3 // *Cryst. Res. Technol.* 2003. Vol. 38, no. 1. P. 74–82.
4. **Ehrt D.** The Effect of ZnO , La_2O_3 , PbO and Bi_2O_3 on the Properties of Binary Borate Glasses and Melts // *Phys. Chem. Glasses*. 2006. Vol. 47, no. 6. P. 669–674.
5. **Мазурин О. В., Стрельцина М. В., Швайко-Швайковская Т. П.** Свойства стекол и стеклообразующих расплавов: Справочник. СПб.: Наука, 1998. Т. 6, ч. 2. 523 с.
6. **Кучакшов Д. С., Джабаров А. Г.** Дифференциально-термический анализ бинарной системы $\text{Bi}_2\text{O}_3 + \text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ // *ДАН РТ*. 2015. Т. 58, № 12. С. 1096–1099.
7. **Каргин Ю. Ф., Егорышева А. В.** Фазовые взаимоотношения в системе Na_2O - Bi_2O_3 - B_2O_3 // *ЖНХ*. 2005. Т. 50, № 12. С. 2068–2071.
8. **Кучакшов Д. С., Джабаров А. Г., Холов А.** Свойства стекол на основе соединений Bi_2O_3 и $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ // *ДАН РТ*. 2020. Т. 63, № 7–8. С. 488–493.

9. **Кучакшоев Д. С., Джабаров А. Г., Холов А.** Определение удельной теплоемкости стекол на основе боратов висмута // Изв. НАНТ. Отд-ние физико-математических, химических, геологических и технических наук. 2022. № 4(189). С. 77–83.
10. **Zinoviev V. E.** Thermophysical properties of metals at high temperatures. Reference edition, М.: Metallurgiya, 1989. 384 p.
11. **Бартенев Г. М., Сандитов Д. С.** Релаксационные процессы в стеклообразных системах. Новосибирск: Наука, 1986. 240 с.
12. **Кучакшоев Д. С., Джабаров А. Г., Холов А.** Компьютеризованная установка для исследования спектральных характеристик неорганических и органических материалов на базе ГУР-5 и МДР-23 / XV Нумановские чтения «Современное состояние химической науки и использование ее достижений в народном хозяйстве Республики Таджикистан»: Сб. материалов. 24 октября 2019 г. Душанбе, 2020. С. 81–83.
13. **Кучакшоев Д. С., Джабаров А. Г., Холов А.** Синтез и оптические свойства стекол на основе $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{--Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ // Проблемы современной физики полупроводников: Материалы науч.-практ. конф. Куляб, 2019. С. 34–37.
14. **Сандитов Д. С., Бартенев Г. М.** Физические свойства неупорядоченных структур. Новосибирск: Наука, 1982. 258 с.
15. **Иртюго Л. А., Денисов В. М., Жереб В. П. и др.** Высокотемпературная теплоемкость стекол боратов висмута // Журн. СФУ. Химия. 2011. Т. 4, № 4. С. 344–349.

References

1. **Guloyan Yu. A.** Technology of glass and glass products: a textbook for secondary specialized educational institutions, systems of vocational and industrial training. Vladimир, Transit-X, 2003, 480 p. (in Russ.)
2. **Hasu H., Ito T., Hase H., et al.** Third-Order Optical NonLinearity of Bi_2O_3 -Based Glasses // J. Non-Cryst. Solids. 1996. Vol. 204, no. 1. P. 78–82.
3. **Becker P.** Thermal and Optical Properties of Glasses of the System $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{--B}_2\text{O}_3$ // Cryst. Res. Technol. 2003. Vol. 38, no. 1. P. 74–82.
4. **Ehrt D.** The Effect of ZnO , La_2O_3 , PbO and Bi_2O_3 on the Properties of Binary Borate Glasses and Melts // Phys. Chem. Glasses. 2006. Vol. 47, no. 6. P. 669–674.
5. **Mazurin O. V., Strelytsina M. V., Shvaiko-Shvaykovskaya T. P.** Properties of glasses and glass-forming melts: a Handbook. St. Petersburg, Nauka, 1998, vol. 6, part 2, 523 p.
6. **Kuchakshoev D. S., Dzhabarov A. G.** Differential thermal analysis of the binary system $\text{Bi}_2\text{O}_3 + \text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ // DAN RT. 2015. Vol. 58, no. 12. P. 1096–1099.
7. **Kargin Yu. F., Egorysheva A. V.** Phase relationships in the $\text{Na}_2\text{O--Bi}_2\text{O}_3\text{--B}_2\text{O}_3$ system // ZhNKh. 2005. Vol. 50, no. 12. P. 2068–2071.
8. **Kuchakshoev D. S., Dzhabarov A. G., Kholov A.** Properties of glasses based on Bi_2O_3 and $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ compounds // DAN RT. 2020. Vol. 63, no. 7–8. P. 488–493.
9. **Kuchakshoev D. S., Dzhabarov A. G., Kholov A.** Determination of the specific heat capacity of glasses based on bismuth borates // Izvestiya NANT. Department of Physical and Mathematical, Chemical, Geological and Technical Sciences. 2022. No. 4 (189). P. 77–83.
10. **Zinoviev V. E.** Thermophysical properties of metals at high temperatures. Reference edition, Moscow, Metallurgiya, 1989, 384 p.
11. **Bartenev G. M., Sanditov D. S.** Relaxation processes in glassy systems. Novosibirsk, Nauka, 1986, 240 p.
12. **Kuchakshoev D., Dzhabarov A. G., Kholov A.** Computerized setup for studying the spectral characteristics of inorganic and organic materials based on GUR-5 and MDR-23. Collection of materials XV Numanov's readings «The current state of chemical science and the use of its achievements in the national economy of the Republic of Tajikistan.» October 24, 2019, p. 81–83.

13. **Kuchakshoev D., Dzhabarov A. G., Kholov A.** Synthesis and optical properties of glasses based on $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ // Material scientific-practical conference on the topic «Problems of modern semiconductor physics». Kulyab, December 21, 2019, p. 34–37.
14. **Sanditov D. S., Bartenev G. M.** Physical properties of disordered structures. Novosibirsk, Nauka, 1982, 258 p.
15. **Irtyugo L. A., Denisov V. M., Zhereb V. P., et al.** High-Temperature Heat Capacity of Bismuth Borate Glasses // Zh. SFU. Chemistry. 2011. Vol. 4, no. 4. P. 344–349.

Информация об авторах

Давлатназар Сохибназарович Кучакшоев, соискатель

Александр Гулямович Джабаров, кандидат физико-математических наук

Алимахмад Холов, кандидат химических наук

Information about the Author

Davlatnazar S. Kuchakshoev, Senior Researcher

Alexander G. Dzhabarov, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Alimakhmad Kholov, Candidate of Chemical Sciences

*Статья поступила в редакцию 19.09.2022; одобрена после рецензирования 06.09.2023;
принята к публикации 30.10.2023*

*The article was submitted 19.09.2022; approved after reviewing 06.09.2023;
accepted for publication on 30.10.2023*

Научная статья

УДК 538.958; 538.975

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-71-82

Электрические и оптические переключения в наноструктурах диоксида ванадия, декорированных наночастицами золота

Сергей Владимирович Мутилин¹, Алексей Евгеньевич Гайдук²,
Любовь Владимировна Яковкина³, Александр Иванович Комонов⁴,
Регина Альфредовна Соотс⁵, Кирилл Евгеньевич Капогузов⁶,
Сергей Владиславович Голод⁷, **Виктор Яковлевич Принц⁸**

^{1,2,4,8}Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН
Новосибирск, Россия

³Институт неорганической химии им. А. В. Николаева СО РАН
Новосибирск, Россия

¹mutilin@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-7666-5138>

²aegayduk@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-5824-1972>

³yakovk@niic.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-8916-7453>

⁴komonov@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-8065-6445>

⁵soots@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0002-5887-5323>

⁶k.kapoguzov@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2646-0008>

⁷golod@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0002-4004-6842>

⁸prinz@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0003-3275-2437>

Аннотация

В работе изучены электрические параметры фазового перехода полупроводник–металл в наноструктурах диоксида ванадия, синтезированных с помощью химического осаждения из газовой фазы на подложке кремния (100) и декорированных золотыми наночастицами с поверхностной концентрацией от $3 \cdot 10^9$ до $3 \cdot 10^{10}$ см⁻². Методом рентгенофазного анализа установлено, что синтезированные наноструктуры диоксида ванадия содержат моноклинную M1-фазу, испытывающую фазовый переход при температуре около 68 °С. При помощи сканирующего электронного микроскопа и атомно-силового микроскопа исследована морфология поверхности наноструктур диоксида ванадия, покрытых золотыми наночастицами. Определены характеристики температурного фазового перехода исходных наноструктур и наноструктур, декорированных наночастицами золота. Температурная зависимость сопротивления вблизи точки фазового перехода исходных наноструктур показала, что скачок сопротивлений составляет около четырех порядков по величине, что подтверждает их высокое качество. Показано, что увеличение поверхностной концентрации золотых частиц до значения $3 \cdot 10^{10}$ см⁻² увеличивает проводимость диоксида ванадия при комнатной температуре примерно в два раза, а температуру фазового перехода сдвигает на 5 °С: с 68 до 63 °С. Методами численного моделирования рассмотрены оптические переключения в диоксиде ванадия с массивом золотых частиц с размером 9 нм. Установлено, что отклик электромагнитной волны от материала VO₂ при фазовом переходе усиливается за счет возбуждения локализованного плазмонного резонанса в золотых наночастицах и достигает локального максимума в районе 600 нм. Дополнительно, данный эффект усиливается при углах падения в районе угла псевдо-Брюстера для диоксида ванадия. Рассмотренные гибридные наноструктуры VO₂–Au перспективны в качестве базовых наноэлементов для компьютеров нового поколения, а также для сверхбыстрых и высокочувствительных сенсоров.

© Мутилин С. В., Гайдук А. Е., Яковкина Л. В., Комонов А. И., Соотс Р. А., Капогузов К. Е.,
Голод С. В., Принц В. Я., 2023

Ключевые слова

диоксид ванадия; фазовый переход полупроводник–металл; химическое осаждение из газовой фазы; наночастицы золота; локализованный плазмонный резонанс

Благодарности

Работа поддержана грантом Министерства науки и высшего образования № 075-15-2020-797 (13.1902.21.0024).

Для цитирования

Мутилин С. В., Гайдук А. Е., Яковкина Л. В., Комонов А. И., Соотс Р. А., Капогузов К. Е., Голод С. В., Принц В. Я. Электрические и оптические переключения в наноструктурах диоксида ванадия, декорированных наночастицами золота // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 71–82. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-71-82

Electrical and Optical Switching in Vanadium Dioxide Nanostructures Decorated with Gold Nanoparticles

Sergey V. Mutilin¹, Alexey E. Gayduk², Lyubov V. Yakovkina³,
Alexander I. Komonov⁴, Regina A. Soots⁵, Kirill E. Kapoguzov⁶,
Sergey V. Golod⁷, Viktor Ya. Prinz⁸

^{1,2,4,8}A.V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS,
Novosibirsk, Russian Federation

³A.V. Nikolaev Institute of Inorganic Chemistry SB RAS,
Novosibirsk, Russian Federation

¹mutilin@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-7666-5138>

²aegayduk@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-5824-1972>

³yakovk@niic.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-8916-7453>

⁴komonov@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0001-8065-6445>

⁵soots@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0002-5887-5323>

⁶k.kapoguzov@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2646-0008>

⁷golod@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0002-4004-6842>

⁸prinz@isp.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0003-3275-2437>

Abstract

The electrical parameters of the semiconductor-metal phase transition in vanadium dioxide nanostructures synthesized by chemical vapor deposition on a silicon substrate (100) and decorated with gold nanoparticles with a surface concentration from $3 \cdot 10^9$ to $3 \cdot 10^{10}$ cm⁻² are studied. X-ray phase analysis revealed that the synthesized nanostructures of vanadium dioxide contain a monoclinic M1 phase undergoing a phase transition at a temperature of about 68 °C. The morphology of the surface of vanadium dioxide nanostructures coated with gold nanoparticles was studied using a scanning electron microscope and an atomic force microscope. The characteristics of the temperature phase transition of the initial nanostructures and nanostructures decorated with gold nanoparticles are determined. The temperature dependence of the resistance near the phase transition point of the initial nanostructures showed that the resistance jump is about four orders of magnitude, which confirms their high quality. It is shown that an increase in the surface concentration of gold particles to a value of $3 \cdot 10^{10}$ cm⁻² increases the conductivity of vanadium dioxide at room temperature by about two times, and shifts the phase transition temperature by 5 °C: from 68 °C to 63 °C. Optical switching in vanadium dioxide with an array of gold particles with a size of 9 nm is considered by numerical modeling methods. It is established that the response of the electromagnetic wave from the VO₂ material during the phase transition is enhanced due to the excitation of localized plasmon resonance in gold nanoparticles and reaches a local maximum in the region of 600 nm. Additionally, this effect is enhanced at angles of incidence near the pseudo-Brewster angle for vanadium dioxide. The considered hybrid VO₂–Au nanostructures are promising as basic nanoelements for next-generation computers, as well as for ultrafast and highly sensitive sensors.

Keywords

vanadium dioxide; semiconductor-metal phase transition; chemical vapor deposition; gold nanoparticles; localized plasmon resonance

Funding

The work was supported by the grant of the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation № 075-15-2020-797 (13.1902.21.0024).

For citation

Mutilin S. V., Gayduk A. E., Yakovkina L. V., Komonov A. I., Soots R. A., Kapoguzov K. E., Golod S. V., Prinz V. Ya. Electrical and optical switching in vanadium dioxide nanostructures decorated with gold nanoparticles. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 71–82 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-71-82

Введение

Диоксид ванадия (VO_2) является материалом с сильно коррелированными электронами, в котором проявляется сверхбыстрый (26 фс) обратимый фазовый переход полупроводник–металл I рода при температурах, близких к комнатной (68 °C) [1]. Фазовый переход в VO_2 происходит под воздействием температуры, значительного электрического поля, оптического возбуждения, достаточно больших механических напряжений и пр. [2–5]. При этом в нем происходит обратимый структурный фазовый переход, при котором моноклинная (M1) кристаллическая решетка преобразуется в тетрагональную типа рутил (R). Структурный переход сопровождается изменением зонной структуры вблизи уровня Ферми, в результате чего происходит переход из полупроводникового состояния в металлическое [1; 6], а его проводимость меняется до 100 тысяч раз, изменение коэффициента преломления может достигать единицы ($\Delta n \sim 1$ при $\lambda \sim 1500$ нм) [7]. Такой уникальный набор физических функциональных свойств VO_2 делает его одним из самых перспективных материалов для посткремниевой электроники и фотоники. Наноструктуры VO_2 [8; 9] рассматриваются как основа для многих новых устройств, таких как резистивные переключатели, резистивные элементы памяти, тепловые переключатели, голографические носители записи, перестраиваемые отражающие зеркала, энергоэффективные окна, сенсоры и многие другие [10–13]. На свойства наноструктур VO_2 в значительной степени влияют электрические, оптические и химические процессы, происходящие на их поверхности из-за большого отношения поверхности к объему. Применение наноструктур VO_2 может быть расширено за счет интеграции с металлическими, магнитными или биологическими наночастицами [14–16], которые улучшают функциональность материала, изменяя его свойства. Одним из наиболее изучаемых материалов, из которого формируются металлические наночастицы, является золото (Au), поскольку оно химически стабильно, биосовместимо, легко синтезируется и не окисляется в присутствии кислорода. Размещение наночастиц золота на поверхности наноструктур VO_2 в полупроводниковом состоянии приводит к образованию дополнительных носителей заряда в материале VO_2 за счет разницы химических потенциалов между Au и VO_2 . Помимо научного интереса, такие гибридные структуры за счет явления поверхностного легирования могут привести к формированию новых электронных, оптических и химических сенсорных наноприборов на основе диоксида ванадия [17–20]. Другим широко изучаемым эффектом в гибридных наноструктурах является проявление локализованных поверхностных плазмонных резонансов, возникающих в металлических наночастицах под действием света. Наиболее ярко эффекты плазмонного резонанса выражены в наночастицах золота (Au) [21]. Гибридные наноструктуры VO_2 –Au, из-за их обратимого перестраиваемого эффекта поверхностного плазмонного резонанса, могут быть использованы в качестве нового типа фотоактивного материала для сверхбыстрой оптики [22], в термочувствительной нанофотонике, наносенсорах, плазмонных переключателях и т. д. [23; 24]. Разработка методов формирования и гибридных наноструктур VO_2 –Au и их последующее изучение откроет перспективы создания новых приборов наноэлектроники и нанофотоники.

В данной работе методом химического осаждения из газовой фазы были синтезированы наноструктуры VO_2 , представляющие собой поликристаллические пленки и одиночные нанокристаллы VO_2 . Сформированы гибридные структуры VO_2 –Au с разной концентрацией наночастиц Au на поверхности VO_2 . Показано, что с увеличением концентрации золотых частиц на поверхности VO_2 проводимость структур увеличивается, а температура фазового пере-

да сдвигается в сторону меньших значений. Методами численного моделирования показано, что отклик электромагнитной волны от VO_2 при фазовом переходе усиливается за счет возбуждения локализованного плазмонного резонанса в золотых наночастицах. Рассмотренные гибридные структуры VO_2 –Au открывают перспективы для реализации различных быстродействующих наноразмерных устройств электроники и фотоники.

Экспериментальная часть

Синтез наноструктур VO_2 на подложках Si(100) проводился методом химического осаждения из газовой фазы в двухзонном проточном реакторе с горизонтальным потоком. Рабочее давление в камере реактора составляло 2 Торр, температура синтеза 450 °C [25]. В качестве прекурсора использовался 98 % ванадилацетилацетонат (Aldrich) $(\text{VO}(\text{acac})_2-\text{VO}(\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2)_2)$. Длительность синтеза составляла от 30 до 60 мин.

Наночастицы золота были нанесены на поверхность наноструктур VO_2 из водного раствора капельным методом. Водная дисперсия золота была синтезирована цитратным методом Туркевича с размером частиц 5–15 нм. Данный метод синтеза основан на восстановлении наночастиц золота из водного раствора золотохлороводородной кислоты с использованием цитрата натрия в качестве восстановителя. Предварительно, перед нанесением с целью удаления цитрат-ионов из раствора и увеличения концентрации наночастиц золота была выполнена многократная (от 2 до 5) замена водной части раствора с использованием центрифугирования. После этого структуры с наноструктурами VO_2 и наночастицами золота были отожжены в вакууме при температуре 200 °C в течение 1 часа. Отжиг необходим для удаления поверхностно-активных веществ и воды с поверхности наноструктур VO_2 для лучшего контакта с наночастицами золота.

Морфология сформированных структур исследовалась с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) JEOL-ISM-6700F при энергиях электронного пучка от 2 до 15 кВ и атомно-силового микроскопа (АСМ) Solver P47 Pro (NT – MDT, Россия). Измерения на АСМ проводились в полуконтактном режиме с использованием кремниевых кантилверов HA_HR (TipsNano, Россия) с радиусом закругления игл около 10 нм.

Кристаллическая структура пленок и нанокристаллов исследовалась с помощью рентгенофазного анализа (РФА) с помощью дифрактометра Shimadzu XRD-7000 ($\text{CuK}\alpha$ -излучение, Ni-фильтр, $2\cdot\theta = 5 - 60^\circ$, шаг $0,03^\circ$, время накопления данных 1 или 5 сек) в режиме $\theta-2\cdot\theta$. Для описания дифракционных картин использовалась программа Search Match и Powder Diffraction Files (PDF), International Centre for diffraction data, USA.

Электрические измерения наноструктур VO_2 в температурном диапазоне проводились стандартным двухконтактным методом измерений с помощью источника-измерителя Keysight B2900. Два омических контакта к измеряемому образцу были сформированы при помощи напыленного слоя золота или прижимных вольфрамовых игл. Температура T менялась в интервале от 30 до 80 °C со скоростью 1 °C за 10 секунд в прямом и обратном направлении.

Методами численного моделирования были рассчитаны поляризационные характеристики наноструктур диоксида ванадия, декорированных золотыми наночастицами. Расчет был проведен в программном пакете COMSOL Multiphysics, реализующем метод конечных элементов. В качестве объекта исследования был рассмотрен упорядоченный массив золотых наночастиц с радиусом 9 нм и периодом 22 нм, расположенный на сплошной пленке VO_2 толщиной 200 нм, кремниевая подложка предполагалась полубесконечной. Из литературных данных были взяты оптические константы VO_2 [26] и Au [7]. Источники и приемники электромагнитного поля были заданы при помощи Флоке-портов; использовались периодические граничные условия.

Результаты и обсуждение

Формирование наноструктур в виде поликристаллической пленки и неупорядоченного массива одиночных нанокристаллов VO_2 на кремниевой подложке отличалось временем синтеза. Короткий (около 30 мин) синтез приводил к зарождению нанокристаллов VO_2 и последующему их разрастанию до того момента, когда соседние кристаллы начнут сливаться друг с другом, образуя пленку. На рис. 1, а приведен характерный спектр рентгеновской дифракции. Синтезированные наноструктуры VO_2 имеют моноклинную кристаллическую решетку, принадлежащую к пространственной группе $P2_1/c$ (M1-фазе VO_2). Изменение сопротивления наноструктур VO_2 в зависимости от температуры продемонстрировано на рис. 1, б, а вольтамперные характеристики (ВАХ) при комнатной температуре показаны на рис. 1, в.

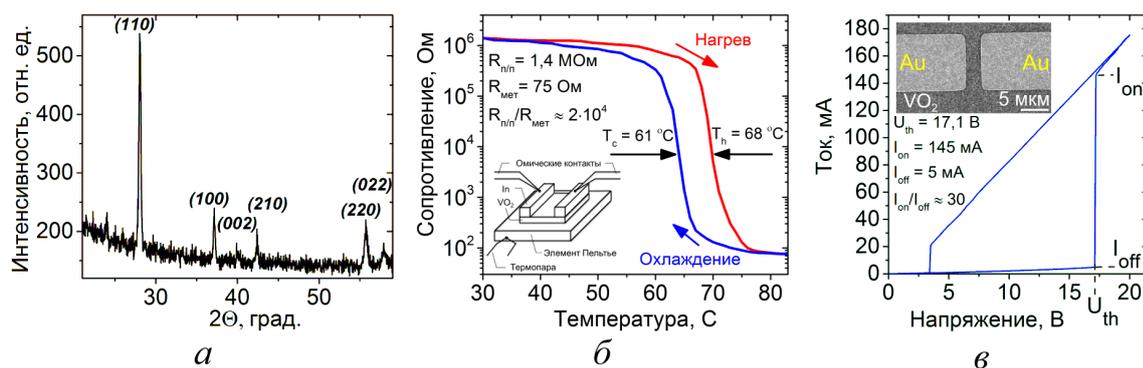


Рис. 1. Характеристики исходных наноструктур VO_2 : а – типичная рентгенограмма. На графике обозначены плоскости кристалла, соответствующие пикам в спектре от M1-фазы VO_2 ; б – зависимость сопротивления VO_2 от температуры. На вставке показана схема эксперимента; в – зависимость тока от напряжения для наноструктур VO_2 . На вставке показано СЭМ-изображение контактных площадок Au, нанесенных на поверхность VO_2

Fig. 1. Characteristics of the original VO_2 nanostructures: а – A typical XRD spectrum. The graph shows the crystal planes corresponding to peaks in the spectrum due to the M1 phase of VO_2 ; б – the resistance of VO_2 versus temperature. The inset shows the experimental scheme; в – the current versus voltage dependence for VO_2 nanostructure characteristic for VO_2 nanostructures. The inset shows the SEM image of Au contact pads deposited on the VO_2 surface

Сопротивление VO_2 резко уменьшается при температуре 68°C на четыре порядка по величине, что свидетельствует о возникновении фазового перехода полупроводник – металл. Обратный фазовый переход металл–полупроводник происходит при температуре 61°C . При этом сопротивление структуры возвращается в исходное состояние. Ширина температурного гистерезиса составляет 7° . Полученные значения говорят о высоком качестве синтезированных наноструктур VO_2 .

Для исследования электрически инициированного фазового перехода в наноструктурах VO_2 были измерены их ВАХ при комнатной температуре между золотыми контактами, расположенными на расстоянии 4 мкм. Такое расстояние между контактами обусловлено тем, что электрически инициированный фазовый переход в VO_2 происходит при напряженности электрического поля около $10^5\text{--}10^8\text{ В}\cdot\text{м}^{-1}$ [27]. При измерении ВАХ на образец подавалась развертка по напряжению от 0 до 20 В. При этом фиксировался скачок тока $I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$, отвечающий фазовому переходу полупроводник–металл в VO_2 и составляющий около 30 раз, и соответствующее ему значение порогового напряжения переключения U_{th} , равное 17,1 В.

В результате проведенных исследований методами РФА, СЭМ, АСМ, измерений температурной зависимости сопротивления и ВАХ показано, что синтезированные наноструктуры VO_2 имеют высокое качество, состоят из одной кристаллической M-фазы и демонстрируют обратимый фазовый переход полупроводник–металл с отношением сопротивлений около 10^4 раз. Далее, на сформированные наноструктуры VO_2 были нанесены наночастицы Au с раз-

личной поверхностной концентрацией частиц на единицу площади (от $3 \cdot 10^9$ до $3 \cdot 10^{10}$ см $^{-2}$). На рис. 2 представлены АСМ-изображения поверхности поликристаллической пленки VO $_2$ до (рис. 2, а) и после (рис. 2, б) декорирования наночастицами Au.

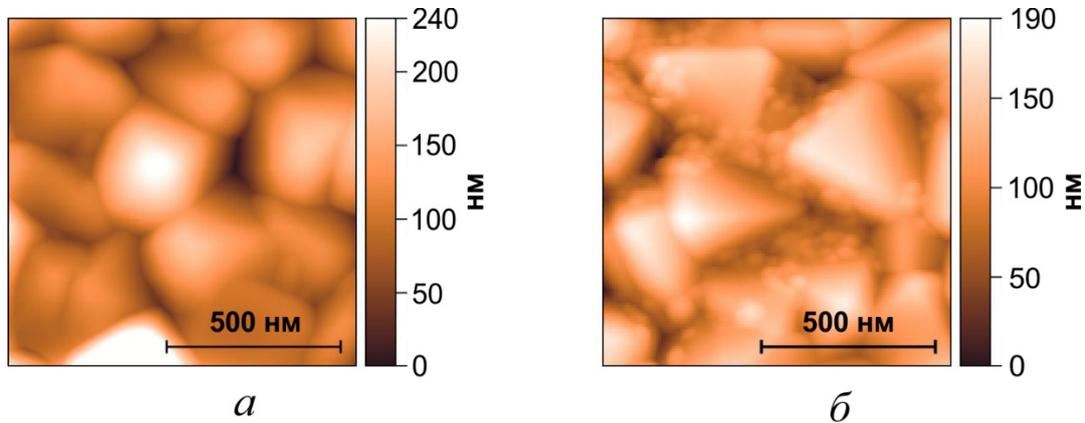


Рис. 2. АСМ-изображения поверхности поликристаллической пленки VO $_2$ до (а) и после (б) осаждения Au-наночастиц. Масштабный отрезок – 500 нм. Слева каждого рисунка изображена цветовая шкала высоты
Fig. 2. AFM images of the surface of a polycrystalline VO $_2$ film (а) before and (б) after deposition of Au nanoparticles. The scalebar is 500 nm. On the left of each figure is a color-scale of height

Средний размер кристаллов VO $_2$ составляет 300 нм, шероховатость пленки составляет около 38 нм. После осаждения наночастиц золота шероховатость пленки практически не изменилась и составила 35 нм. Наночастицы Au распределены на поверхности кристаллов VO $_2$, окружая их со всех сторон. Как видно из АСМ-изображения (см. рис. 2, б), размер наночастиц золота составляет от 5 до 30 нм. В случае контакта Au и VO $_2$ ожидается модуляция проводимости в VO $_2$ за счет инжекции носителей зарядов из приконтактной области золота. Действительно, работа выхода Au (около 4,83 эВ) имеет гораздо меньшее значение, чем работа выхода VO $_2$ (5,15 эВ). Это означает, что при соприкосновении VO $_2$ и Au на границе раздела образуются слои, обогащенные электронами (рис. 3). Величина изгиба зон VO $_2$ в приконтактной области определяется разностью работ выхода двух материалов (VO $_2$ и Au).

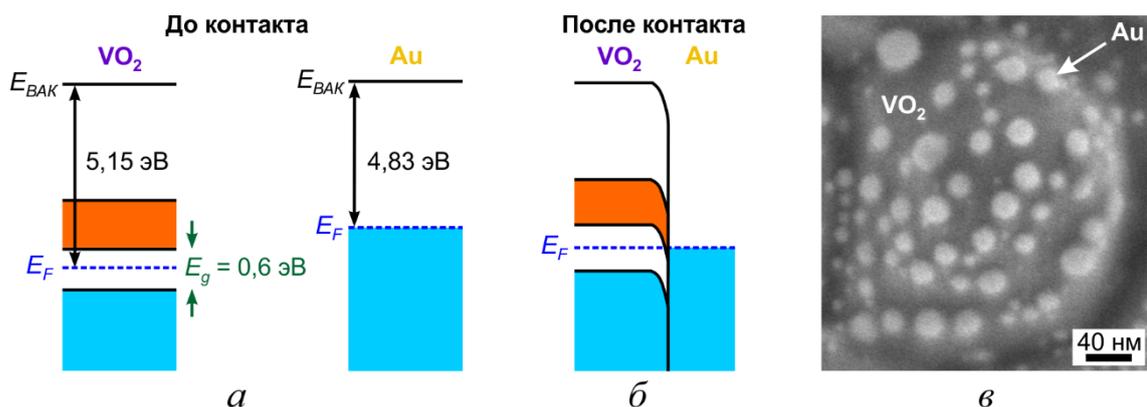


Рис. 3. Схематичное представление зонной диаграммы гетероперехода Au–VO $_2$. Зонная диаграмма материалов (а) до и (б) после соприкосновения; (в) СЭМ-изображение одиночного нанокристалла VO $_2$, декорированного Au-наночастицами

Fig. 3. Schematic representation of the band diagram of the Au–VO $_2$ heterojunction. Band diagram of materials (а) before and (б) after contact; (в) SEM image of a single VO $_2$ nanocrystal decorated with Au nanoparticles

В VO_2 обогащенный электронами слой образуется за счет инжекции электронов из металлического контакта и может распространяться на глубину нескольких десятков нанометров в объем VO_2 [28]. Инжекция электронов приводит к увеличению концентрации электронов в интерфейсных слоях VO_2 . Согласно теории Зильберштейна и Мотта [29], увеличение концентрации электронов дестабилизирует полупроводниковую фазу. Последнее, в свою очередь, приводит к локальному увеличению концентрации электронов в приповерхностном слое наноструктур VO_2 . Поскольку Au – благородный металл с высокой концентрацией свободных носителей (порядка 10^{22} см^{-3}), на Au появляется незначительная обедненная область, тогда как поверхностное накопление электронов на стороне VO_2 приводит к образованию двумерного поверхностного проводящего канала вдоль поверхности. Очевидно, что при уменьшении размера нанокристаллов VO_2 (рис. 3, в) весь объем структуры может быть легирован. В данной работе мы использовали наночастицы Au со средним диаметром 9 нм. Эти наночастицы были недостаточно малы, чтобы образовать квантованные уровни энергии носителей при комнатной температуре. Следовательно, они не подвержены эффекту квантового ограничения, который, как ожидается, будет распространяться даже при комнатной температуре в наночастицах Au диаметром менее 5 нм.

На рис. 4 представлены СЭМ-изображения поверхности поликристаллических пленок VO_2 с разной поверхностной концентрацией наночастиц Au.

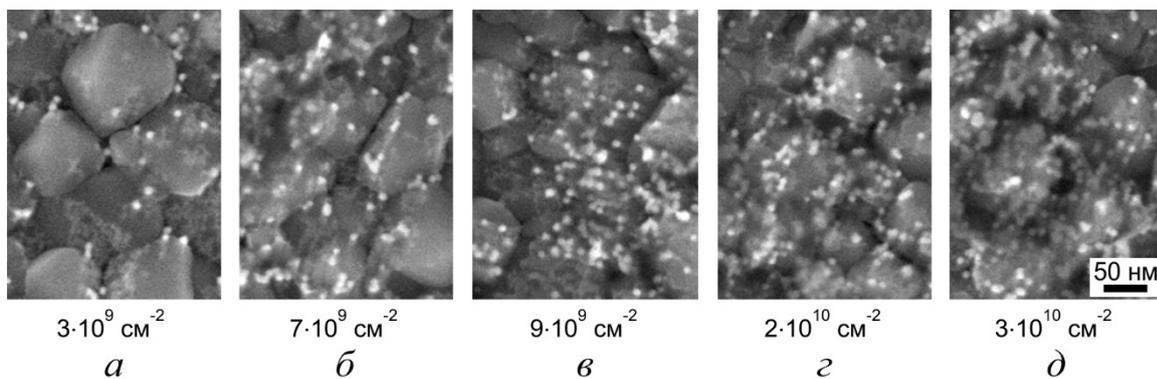


Рис. 4. Поликристаллические пленки VO_2 , декорированные золотыми наночастицами с разной поверхностной концентрацией (указана под соответствующим рисунком)

Fig. 4. Polycrystalline VO_2 films decorated with gold nanoparticles with different surface concentrations (indicated under the corresponding figures)

Для сформированных гибридных структур были исследованы ВАХ и температурный фазовый переход полупроводник–металл (рис. 5). Все измерения проводились в диапазоне от -1 до 1 В. В этом диапазоне все контакты были омическими с низким контактным сопротивлением по отношению к VO_2 как в полупроводниковом, так и в металлическом состояниях. Кривые ВАХ, измеренные при комнатной температуре, представлены на рис. 5, а. Они симметричны относительно нуля и имеют линейный вид как для исходных наноструктур VO_2 , так и для наноструктур VO_2 , декорированных Au наночастицами. Из рисунка 5, а следует, что чем выше концентрация наночастиц Au на поверхности VO_2 , тем ниже его сопротивление при комнатной температуре. Электрический ток при поверхностной концентрации Au наночастиц $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ составил около 400 мкА при 1 В , что примерно в 2 раза больше по сравнению с током, протекающем в исходных наноструктурах VO_2 . Увеличение тока мы связываем с увеличением количества носителей заряда в VO_2 из-за расположенных на боковой поверхности наночастицах Au. Известно, что концентрация носителей в VO_2 в металлическом состоянии достигает 10^{23} см^{-3} , в то время как в полупроводниковом состоянии она составляет примерно

10^{18} см^{-3} [30]. Из приведенного выше обсуждения мы предполагаем, что тонкий обогащенный электронами слой формируется в VO_2 путем инжекции поверхностных носителей через наночастицы золота. Это приводит к тому, что сопротивление наноструктур VO_2 при комнатной температуре падает с ростом концентрации наночастиц Au. Отметим, что модуляция проводимости наблюдается в VO_2 при температурах, значительно ниже температуры фазового перехода (68°C).

На рис. 5, б показана серия измерений сопротивления гибридных наноструктур $\text{VO}_2\text{-Au}$ в зависимости от температуры вблизи точки фазового перехода VO_2 для разных поверхностных концентраций наночастиц Au. Увеличение поверхностной концентрации золотых частиц приводит к уменьшению температуры фазового перехода. Так, для исходных наноструктур VO_2 как было показано, температура фазового перехода составляет 68°C . А при концентрации золотых частиц на поверхности наноструктур VO_2 , составляющей $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, температура фазового перехода уменьшается до значения 63°C . При этом резкость фазового перехода, ширина температурного гистерезиса и величина скачка сопротивления практически не меняется. Таким образом, показано, что осаждение наночастиц золота влияет на проводимость наночастиц VO_2 и температуру фазового перехода. Умение управлять этими величинами является одной из важнейших задач для практических применений VO_2 [31–33].

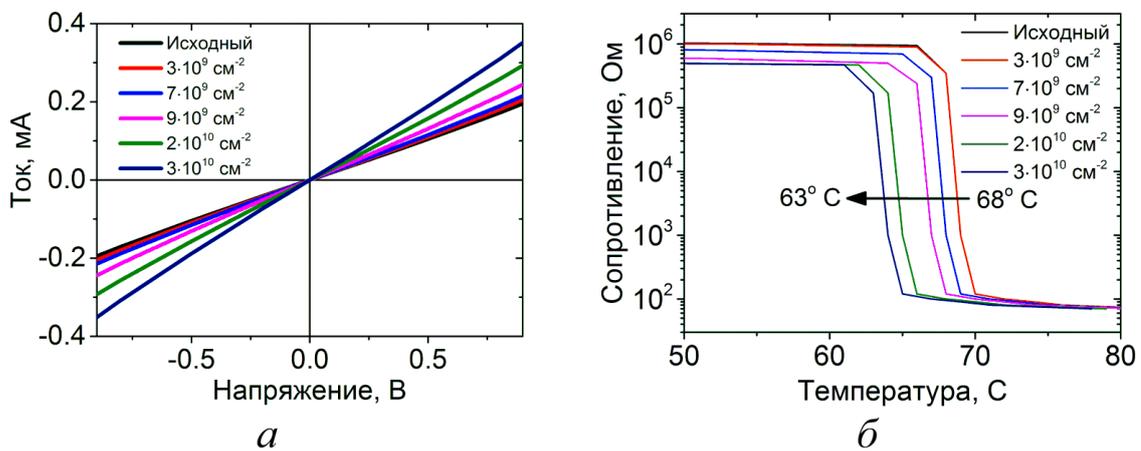


Рис. 5. Электрические измерения наноструктур VO_2 , декорированных Au-наночастицами. ВАХ (а) и температурная (б) зависимость сопротивления гибридных наноструктур в зависимости от поверхностной концентрации Au наночастиц

Fig. 5. Electrical measurements of VO_2 nanostructures decorated with Au nanoparticles. (a) I-V characteristics and (b) resistance versus temperature of hybrid nanostructures depending on the surface concentration of Au nanoparticles

Помимо особенностей электрических характеристик, возникающих при фазовом переходе в наноструктурах VO_2 , декорированных Au-наночастицами, были рассмотрены оптические переключения при тепловом фазовом переходе. Как известно, наиболее сильно оптические константы VO_2 изменяются в инфракрасном и терагерцовом диапазонах [7]. В видимой части спектра данный эффект проявляется слабее, дополнительно к этому необходимо учитывать высокий коэффициент поглощения VO_2 . Для эффективного управления электромагнитным излучением видимого диапазона эффект переключения в VO_2 можно усилить при помощи резонансных нанопотонных структур, например плазмонных наночастиц. Для этого при помощи численного моделирования были исследованы поляризационные характеристики пленок VO_2 , декорированные Au-наночастицами. Изучались поляризационные характеристики гибридных структур $\text{VO}_2\text{-Au}$ в геометрии наклонного падения, соответствующей эллипсоидальному

эксперименту. На рис. 6, а в качестве примера приведен спектр отражения s-волны для случая полупроводникового состояния VO_2 .

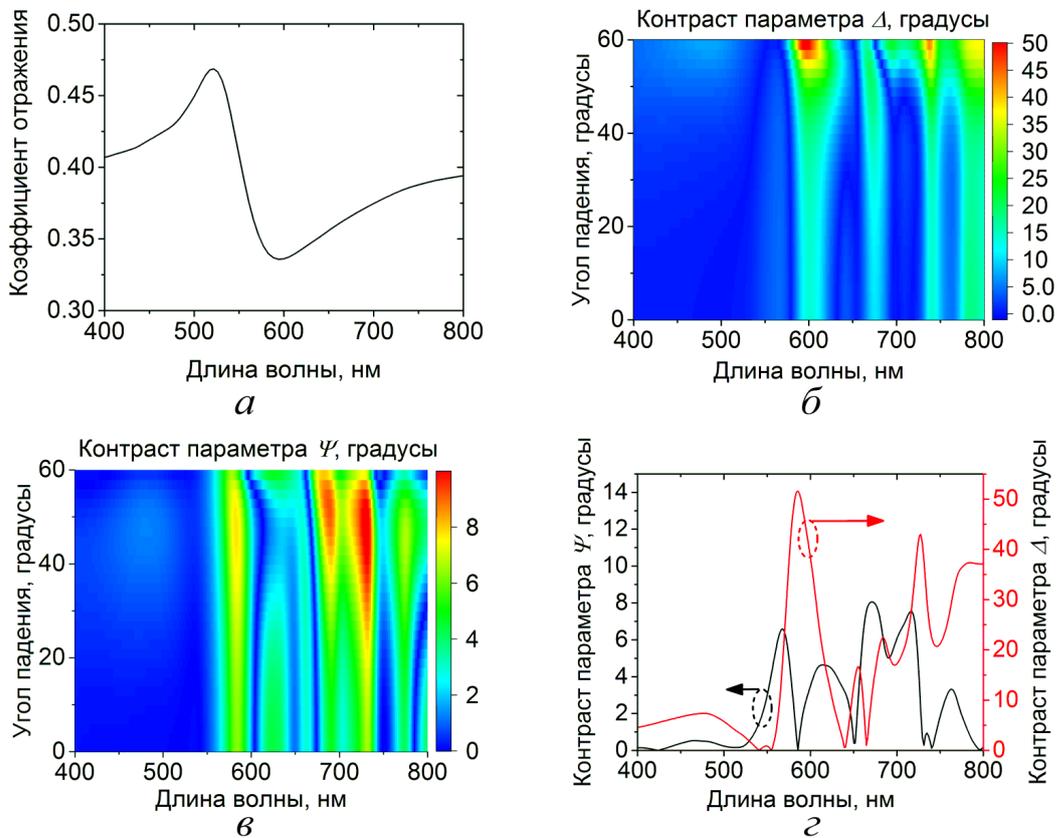


Рис. 6. Оптические переключения в пленке VO_2 , декорированной Au-наночастицами: а – спектр отражения для случая ТЕ-волны, падающей под углом 60° ; б – контраст эллипсометрических параметров Δ ; в – Ψ для случаев полупроводникового и металлического состояний VO_2 в зависимости от длины волны и угла падения электромагнитной волны; г – контраст эллипсометрических параметров Δ и Ψ при угле падения 60°

Fig. 6. Optical switching in a VO_2 film decorated with Au nanoparticles: a – the reflection spectrum for the case of a TE wave incident at an angle of 60° ; б – the contrast of ellipsometric parameters Δ ; в – Ψ for the cases of semiconductor and metallic VO_2 states, depending on the wavelength and angle of incidence of the electromagnetic wave; г – the contrast of ellipsometric parameters Δ and Ψ at an angle of incidence of 60°

Локальный максимум в районе 600 нм обусловлен возбуждением локализованного плазмонного резонанса в Au-наночастицах. Известно, что эллипсометрическая схема является чувствительной к изменению фазы электромагнитной волны [7]:

$$\frac{R_p}{R_s} = \text{tg}\Psi e^{i\Delta},$$

где R_p , R_s – амплитудные коэффициенты отражения р- и s-поляризацій, $\Delta = \arg\left(\frac{R_p}{R_s}\right)$ и $\Psi = \text{abs}\left(\frac{R_p}{R_s}\right)$ – эллипсометрические параметры.

На рис. 6, б приведена карта распределения разности эллипсометрического параметра Δ для случаев металлического и полупроводникового состояний пленки VO_2 в зависимости от длины волны и угла падения падающего излучения. Аналогичная карта для параметра Ψ изображена на рис. 6, в. Хорошо видно, что высокий контраст (красный цвет на картах) име-

ет место для длинноволнового диапазона, что обусловлено большой разностью показателей преломления VO_2 в металлическом и полупроводниковом состояниях. В видимой области спектра наилучший контраст достигается в области длин волн, соответствующих плазмонному резонансу в Au-наночастицах. Данный результат обусловлен высокой чувствительностью спектрального положения локализованного плазмонного резонанса к диэлектрическому окружению. Дополнительно, данный эффект усиливается при углах падения θ в диапазоне от 55° до 65° , т. е. в районе угла псевдо-Брюстера для VO_2 (рис. 6, z приведен для разности эллипсометрических параметров при угле падения 60° градусов).

Таким образом, декорирование поверхности VO_2 золотыми наночастицами позволяет усилить эффект переключения в видимом диапазоне вследствие локализованного плазмонного резонанса, а также подбором угла падения, обеспечивающего высокую чувствительность к набегу фазы электромагнитной волны.

Заключение

В результате сформированы гибридные наноструктуры VO_2 -Au с концентрацией наночастиц Au от $3 \cdot 10^9$ до $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ и средним размером около 9 нм на поверхности VO_2 . Показано, что сформированные наноструктуры содержат моноклинную M1-фазу VO_2 и имеют высокое качество. Определены характеристики температурного фазового перехода как исходных наноструктур, так и декорированных наночастицами Au. Выявлено, что с увеличением поверхностной концентрации золотых частиц проводимость наноструктур VO_2 увеличивается, а температура фазового перехода уменьшается. Методами численного моделирования установлено, что отклик электромагнитной волны от материала VO_2 при фазовом переходе усиливается за счет возбуждения локализованного плазмонного резонанса в золотых наночастицах. Данный эффект позволяет усилить модуляцию электромагнитной волны в видимом диапазоне. Рассмотренные гибридные наноструктуры VO_2 -Au перспективны для приборов и устройств оптоэлектроники и нанофотоники. Представленная гибридная система может иметь огромный потенциал для реализации различных наноразмерных полевых транзисторов, оптоэлектронных переключателей, электронных и оптических мемристоров и миниатюрных биохимических и газовых датчиков.

Список литературы/References

1. **Morin F. J.** (1959) Oxides Which Show a Metal-to-Insulator Transition at the Neel Temperature. *Phys Rev Lett* 3:34–36. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.3.34>
2. **Stefanovich G., Pergament A., Stefanovich D.** (2000) Electrical switching and Mott transition in VO_2 . *J Phys Condens Matter* 12:8837–8845. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/12/41/310>
3. **Becker M. F., Buckman A. B., Walser R. M., et al.** (1994) Femtosecond laser excitation of the semiconductor-metal phase transition in VO_2 . *Appl Phys Lett* 65:1507–1509. <https://doi.org/10.1063/1.112974>
4. **Park J. H., Coy J. M., Kasirga T. S., et al.** (2013) Measurement of a solid-state triple point at the metal–insulator transition in VO_2 . *Nature* 500:431–434. <https://doi.org/10.1038/nature12425>
5. **Koo H., Yoon S., Kwon O.-J., et al.** (2012) Effect of lattice misfit on the transition temperature of VO_2 thin film. *J Mater Sci* 47:6397–6401. <https://doi.org/10.1007/s10853-012-6565-1>
6. **Aetukuri N. B., Gray A. X., Drouard M., et al.** (2013) Control of the metal–insulator transition in vanadium dioxide by modifying orbital occupancy. *Nat Phys* 9:661–666. <https://doi.org/10.1038/nphys2733>
7. **Wan C., Zhang Z., Woolf D., et al.** (2019) On the Optical Properties of Thin-Film Vanadium Dioxide from the Visible to the Far Infrared. *Ann Phys* 531: <https://doi.org/10.1002/andp.201900188>

8. **Mutilin S. V., Prinz V. Y., Seleznev V. A., Yakovkina L. V.** (2018) Growth of ordered arrays of vertical free-standing VO₂ nanowires on nanoimprinted Si. *Appl Phys Lett*. <https://doi.org/10.1063/1.5031075>
9. **Prinz V. Y., Mutilin S. V., Yakovkina L. V., et al.** (2020) A new approach to the fabrication of VO₂ nanoswitches with ultra-low energy consumption. *Nanoscale* 12:3443–3454. <https://doi.org/10.1039/C9NR08712E>
10. **Yang Z., Ko C., Ramanathan S.** (2011) Oxide Electronics Utilizing Ultrafast Metal-Insulator Transitions. *Annu Rev Mater Res* 41:337–367. <https://doi.org/10.1146/annurev-matsci-062910-100347>
11. **Nakano M., Shibuya K., Ogawa N., et al** (2013) Infrared-sensitive electrochromic device based on VO₂. *Appl Phys Lett* 103:153503. <https://doi.org/10.1063/1.4824621>
12. **Kats M. A., Blanchard R., Zhang S., et al.** (2013) Vanadium Dioxide as a Natural Disordered Metamaterial: Perfect Thermal Emission and Large Broadband Negative Differential Thermal Emittance. *Phys Rev X* 3:041004. <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.3.041004>
13. **Rios C., Hosseini P., Wright C. D., et al.** (2014) On-Chip Photonic Memory Elements Employing Phase-Change Materials. *Adv Mater* 26:1372–1377. <https://doi.org/10.1002/adma.201304476>
14. **Tan S. J., Campolongo M. J., Luo D., Cheng W.** (2011) Building plasmonic nanostructures with DNA. *Nat Nanotechnol* 6:268–276. <https://doi.org/10.1038/nnano.2011.49>
15. **Puntes V. F., Gorostiza P., Aruguete D. M., et al.** (2004) Collective behaviour in two-dimensional cobalt nanoparticle assemblies observed by magnetic force microscopy. *Nat Mater* 3:263–268. <https://doi.org/10.1038/nmat1094>
16. **Hu M.-S., Chen H.-L., Shen C.-H., et al.** (2006) Photosensitive gold-nanoparticle-embedded dielectric nanowires. *Nat Mater* 5:102–106. <https://doi.org/10.1038/nmat1564>
17. **Xue Y., Yin S.** (2022) Element doping: a marvelous strategy for pioneering the smart applications of VO₂. *Nanoscale* 14:11054–11097. <https://doi.org/10.1039/D2NR01864K>
18. **Xu G., Huang C.-M., Tazawa M., et al.** (2008) Electron injection assisted phase transition in a nano-Au-VO₂ junction. *Appl Phys Lett* 93:061911. <https://doi.org/10.1063/1.2972106>
19. **Rashidi A., Pulford M., Hatf A.** (2022) Photo-thermal-induced response of VO₂@Au@Au-seeds nanovesicle: A highly efficient NIR tunable nanoscatterer. *Int J Therm Sci* 176:107527. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2022.107527>
20. **Liang J., Yu L., Wang Y., et al.** (2022) Periodic Arrays of 3D AuNP-Capped VO₂ Shells and Their Temperature-Tunable SERS Performance. *Adv Opt Mater* 10:. <https://doi.org/10.1002/adom.202102615>
21. **Ferrara D. W., Nag J., MacQuarrie E. R., et al.** (2013) Plasmonic Probe of the Semiconductor to Metal Phase Transition in Vanadium Dioxide. *Nano Lett* 13:4169–4175. <https://doi.org/10.1021/nl401823r>
22. **Maaza M., Nemraoui O., Sella C., Beye A. C.** (2005) Surface Plasmon Resonance Tunability in Au–VO₂ Thermo-chromic Nano-composites. *Gold Bull* 38:100–106. <https://doi.org/10.1007/BF03215243>
23. **Xu G., Chen Y., Tazawa M., Jin P.** (2006) Surface Plasmon Resonance of Silver Nanoparticles on Vanadium Dioxide. *J Phys Chem B* 110:2051–2056. <https://doi.org/10.1021/jp055744j>
24. **Xu G., Huang C.-M., Tazawa M., et al.** (2009) Tunable optical properties of nano-Au on vanadium dioxide. *Opt Commun* 282:896–902. <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2008.11.045>
25. **Yakovkina L. V., Mutilin S. V., Prinz V. Y., et al.** (2017) MOCVD growth and characterization of vanadium dioxide films. *J Mater Sci* 52:4061–4069. <https://doi.org/10.1007/s10853-016-0669-y>
26. **Tompkins H. G., Irene E. A.** (2005) *Handbook of Ellipsometry*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg
27. **Hormoz S., Ramanathan S.** (2010) Limits on vanadium oxide Mott metal–insulator transition field-effect transistors. *Solid State Electron* 54:654–659. <https://doi.org/10.1016/j.sse.2010.01.006>

28. **Lüth H.** (2015) Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films. Springer International Publishing, Cham
29. **Zylbersztejn A., Mott N. F.** (1975) Metal-insulator transition in vanadium dioxide. Phys Rev B 11:4383–4395. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.11.4383>
30. **Khan G. R., Ahmad B.** (2017) Effect of quantum confinement on thermoelectric properties of vanadium dioxide nanofilms. Appl Phys A 123:795. <https://doi.org/10.1007/s00339-017-1363-x>
31. **Wang L., Shao Z., Li Q., et al.** (2022) Dynamic Modulation of Phase Transition by External Strain Engineering in Quasi-van der Waals Epitaxial VO₂ Films on Fluorophlogopite. Adv Mater Interfaces 9. <https://doi.org/10.1002/admi.202200864>
32. **Wu J., Tong L., Wang H., et al.** (2022) Regulation of phase transition temperature and preparation for doping-VO₂ smart thermal control films. J Appl Phys 131. <https://doi.org/10.1063/5.0054066>
33. **Fu Y., Song Z., Jiang M., et al.** (2022) Plasmonic Hot-Electron Injection Driving Ultrafast Phase Transition in Self-Supported VO₂ Films for All-Optical Modulation. ACS Photonics 9:3950–3957. <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.2c01326>

Информация об авторах

Сергей Владимирович Мутилин, кандидат физико-математических наук

Алексей Евгеньевич Гайдук, кандидат физико-математических наук

Любовь Владимировна Яковкина, кандидат химических наук

Александр Иванович Комонов, инженер

Регина Альфредовна Соотс, ведущий инженер

Кирилл Евгеньевич Капогузов, младший научный сотрудник

Сергей Владиславович Голод, кандидат физико-математических наук

Виктор Яковлевич Принц, доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН

Information about the Authors

Sergey V. Mutilin, Ph.D. (Physics and Mathematics)

Alexey E. Gayduk, Ph.D. (Physics and Mathematics)

Lyubov V. Yakovkina, Ph.D. (Chemistry)

Alexander I. Komonov, Engineer

Regina A. Soots, Leading Engineer

Kirill E. Kapoguzov, Junior Researcher

Sergey V. Golod, Ph.D. (Physics and Mathematics)

Victor Ya. Prinz, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Corresponding member of the RAS

*Статья поступила в редакцию 19.09.2023;
одобрена после рецензирования 20.11.2023; принята к публикации 23.11.2023*

*The article was submitted 19.09.2023;
approved after reviewing 20.11.2023; accepted for publication on 23.11.2023*

Научная статья

УДК 620.3

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-83-94

Повышение эффективности получения наночастиц латуни методом испарения непрерывным пучком электронов высокой энергии

Эржена Чимитдоржиевна Хартаева¹, Андрей Валерьевич Номоев¹,
Сергей Прокопьевич Бардаханов^{1,2}, Константин Владимирович Зобов^{1,2},
Дмитрий Юрьевич Труфанов², Василий Рудольфович Гапоненко²,
Дамдин Галсанович Цыдыпов¹

¹Институт физического материаловедения СО РАН
Улан-Удэ, Россия

²Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН
Новосибирск, Россия

erzhena.har@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0003-1109-4260>
nomoevav@mail.ru, <https://orcid.org/0009-0000-6201-6743>
bardnsk@yandex.ru, <https://orcid.org/0000-0002-0608-3244>
zobov.kv@yandex.ru, <https://orcid.org/0009-0001-2747-4404>
finnwal@yandex.ru, <https://orcid.org/0009-0006-3809-2838>
vasko-nsk@yandex.ru, <https://orcid.org/0009-0004-7996-8141>
damdinkatsydygov@gmail.com, <https://orcid.org/0009-0005-5571-5075>

Аннотация

Композитные, медь- и цинксодержащие наночастицы, а также наночастицы латуни получены высокопроизводительным методом испарения веществ релятивистским пучком электронов. Рассмотрены изменения структуры, формы и состава нанопорошков, созданных при последовательных облучениях слитка латуни, помещенного в однозонный графитовый тигель. Выявлено, что получение таких частиц зависит от концентрации насыщенных паров цинка и меди. Разработана двухзонная конфигурация тигля, позволяющая реализовать одномоментное испарение составных компонентов, тем самым обеспечивая условие для формирования однородных наночастиц латуни с равномерным распределением элементов и высокого выхода нанопорошка. Проведены рентгенофазовый анализ, трансмиссионная электронная микроскопия, энергодисперсионный анализ, определена удельная поверхность полученных наночастиц. Обсуждается механизм образования композитных наночастиц.

Ключевые слова

наночастицы оксида меди/цинка, электронный пучок, латунь, ускоритель электронов, просвечивающая электронная микроскопия, энергодисперсионный анализ

Благодарности

Работа выполнена по проекту государственного задания № 0270-2021-0002 «Физические характеристики, особенности строения, фазовые диаграммы и функциональные свойства композитных структур и материалов».

Для цитирования

Хартаева Э. Ч., Номоев А. В., Бардаханов С. П., Зобов К. В., Труфанов Д. Ю., Гапоненко В. Р., Цыдыпов Д. Г. Повышение эффективности получения наночастиц латуни методом испарения непрерывным пучком электронов высокой энергии // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 83–94. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-83-94

© Хартаева Э. Ч., Номоев А. В., Бардаханов С. П., Зобов К. В., Труфанов Д. Ю., Гапоненко В. Р., Цыдыпов Д. Г., 2023

Experiments to Improve the Efficiency of Obtaining Brass Nanoparticles by Evaporation by a Continuous Beam of High-Energy Electrons

Erzhena Ch. Khartaeva¹, Andrey V. Nomoev¹,
Sergey P. Bardakhanov^{1,2}, Konstantin V. Zobov^{1,2},
Dmitriy Yu. Trufanov², Vasilii R. Gaponenko²,
Damdin G. Tsydypov¹

¹Institute of Physical Materials Science SB RAS
Ulan-Ude, Russian Federation

²Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation

erzhena.har@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0003-1109-4260>

nomoevav@mail.ru, <https://orcid.org/0009-0000-6201-6743>

bardnsk@yandex.ru, <https://orcid.org/0000-0002-0608-3244>

zobov.kv@yandex.ru, <https://orcid.org/0009-0001-2747-4404>

finnwal@yandex.ru, <https://orcid.org/0009-0006-3809-2838>

vasko-nsk@yandex.ru, <https://orcid.org/0009-0004-7996-8141>

damdinkatsydydypov@gmail.com, <https://orcid.org/0009-0005-5571-5075>

Annotation

Composite, copper and zinc containing nanoparticles and brass nanoparticles have been obtained by a high-performance method of evaporation of substances by a relativistic electron beam. The change in the stoichiometry of nanopowders produced by stepwise irradiation of a brass ingot placed in a single-zone graphite crucible is considered. It was found that the production of such particles depends on the concentration of saturated vapors of zinc and copper. A two-zone configuration of the crucible has been developed, which makes it possible to realize the simultaneous evaporation of the constituent components, thereby providing the conditions for the formation of uniform brass nanoparticles with a uniform distribution of elements and a high yield of nanopowder. X-ray diffraction analysis (XRD), Transmission electron microscopy (TEM), Energy dispersive X-ray analysis (EDX) were carried out, and the specific surface of the obtained nanoparticles was determined. The mechanism of formation of composite nanoparticles is discussed.

Keywords

copper / zinc oxide nanoparticles, electron beam, brass, electron accelerator, transmission electron microscopy, energy dispersive analysis

Funding

This work was carried out according to the draft state task No. 0270-2021-0002 “Physical characteristics, structural features, phase diagrams and functional properties of composite structures and materials”.

For citation

Khartaeva E. Ch., Nomoev A. V., Bardakhanov S. P., Zobov K. V., Trufanov D. Yu., Gaponenko V. R., Tsydypov D. G. Experiments to improve the efficiency of obtaining brass nanoparticles by evaporation by a continuous beam of high-energy electrons. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 83–94 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-83-94

Введение

Возрастающий интерес к наночастицам цинка и меди связан с ростом числа областей их применения, среди которых можно перечислить газовые сенсоры, катализаторы, оптические излучатели, пьезоэлектрические преобразователи, люминесцентные материалы, полупроводниковые устройства и т. п. [1]. Структуры на основе наноразмерных частиц оксида цинка являются перспективным материалом для нанoeлектроники. Известно, что частицы латуни обладают повышенными антибактериальными свойствами [2]. Поэтому актуальность исследования обусловлена необходимостью получения композитных нанопорошков меди/цинка для электронных и биомедицинских приложений.

Форма и размер наночастиц, их фазовый и химический состав определяют свойства конечного материала, а именно возможность его дальнейшего применения. Поэтому управление

этим параметрами путем подбора условий синтеза наноразмерных частиц является важнейшей задачей исследований.

На сегодняшний день известно несколько способов получения наночастиц латуни. Одним из них является электрический взрыв проводников, связанный с разрушением металлического проводника при прохождении по нему импульса тока большой плотности (более 10^{10} А/м²) [1]. Другой метод описан в [3], где наночастицы латуни создавались под действием лазерного излучения в этаноле. Это малопроизводительные методы (не более 102 мкг/мин), кроме того, фазовый состав частиц и зависимость размера и структуры от мощности облучения в работе [3] не установлены.

Наиболее перспективные методы сочетают в себе экологическую безопасность и высокий выход продукта с наноразмерными частицами. Такой метод представляет собой газофазный синтез с мощным источником электронного излучения [4; 5].

В настоящей работе основной целью эксперимента является выявление возможности получения композитных, медь- и цинксодержащих наночастиц и повышение эффективности получения наночастиц латуни испарением веществ непрерывным пучком электронов высокой энергии.

Материалы и методики

В качестве источника нагрева материала для получения композитных наночастиц использована установка электронно-лучевого испарения открытого типа на основе релятивистского ускорителя электронов типа ЭЛВ-6 с энергией 1,4 МэВ и током в диапазоне 5–25 мА [5; 6]. На рис. 1 представлена схема эксперимента [4–6]. Проходящий через камеру устройства выпуска в атмосферу 1 и диафрагму 2 электронный пучок 3 ускорителя мощностью $1,4 \text{ МэВ} \cdot 10 \text{ мА} = 14 \text{ кВт}$ облучает металл 6, находящийся в центральной зоне графитового тигля 8 в течение 3 минут. Несущий инертный газ – аргон 4 подается в установку со скоростью 20 л/мин и уносит пары металлов по газовому тракту 5, проходя через отделитель крупных фракций 9. Пары осаждаются в виде наночастиц в бокс-фильтре 10. Аргон удаляется через вытяжку 11. Тигли, в которых облучали металлы, изготовлялись из графита высокой чистоты. Использовались два типа тиглей из графита, устойчивого к высокотемпературным воздействиям, с инертностью ко многим химическим элементам и соединениям, способностью выдерживать перепады температур, несмачиваемостью металлами, повышенной механической прочностью при нагреве до 2400 °С.

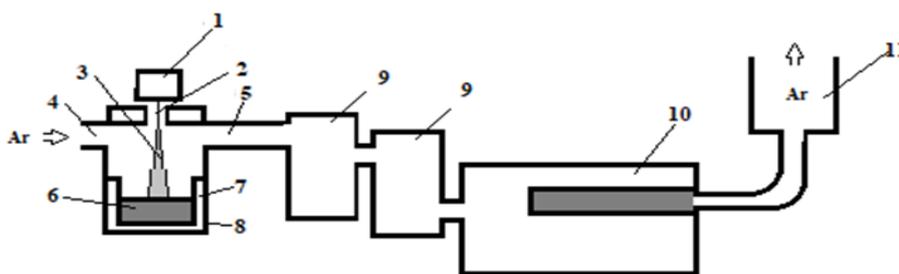


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 – камера устройства выпуска электронного пучка в атмосферу; 2 – диафрагма; 3 – электронный пучок; 4 – вход транспортного газа аргона; 5 – выход аргона с наночастицами; 6 – медь; 7 – латунь; 8 – графитовый двухзонный тигель; 9 – отделитель крупных фракций; 10 – бокс-фильтр; 11 – вытяжка

Fig. 1. Scheme: 1 – chamber of the device for emitting an electron beam into the atmosphere; 2 – diaphragm; 3 – electron beam; 4 – argon transport gas inlet; 5 – argon outlet with nanoparticles; 6 – copper; 7 – brass; 8 – two-zone graphite crucible; 9 – sublimator body with water-cooled walls; 10 – box filter; 11 – hood

Первый, однозонный тигель изготовлен в виде цилиндра с дном, с одной внутренней полостью. Электронный пучок, проходя через диафрагму 2, облучает латунь промышленной марки Л63, которая плавится и испаряется (рис. 2, а). Пары сплава уносятся аргоном из испарительной камеры через сублиматор 9 и оседают на фильтре. Второй, двухзонный тигель имеет две концентрические полости (рис. 2, б). Твердые образцы промышленной меди марки М0 и латуни марки Л63 помещаются в тигли 8, изготовленные из графита высокой степени чистоты и плотности. В центральной зоне двухзонного тигля помещается медь, в периферийной зоне – латунь. Тигель помещался в водоохлаждаемый сублиматор, изготовленный из нержавеющей стали. Пространство между стенками сублиматора и графитового тигля заполнялось измельченным графитом для равномерного теплообмена. Толщина внешней стенки тиглей составляла 2 см. Аргон удаляется через вытяжку 11. Интенсивный нагрев электронным пучком центральной зоны тигля и разработанная двухзонная конструкция тигля с предложенным размещением материалов позволяют обеспечить одновременное испарение меди из центральной зоны и цинка из периферии. Электронный пучок, попадая в центральную зону, облучает медь, которая плавится и испаряется, отдавая часть тепла через стенку графитового тигля латунному слитку, расположенному в периферийной зоне.

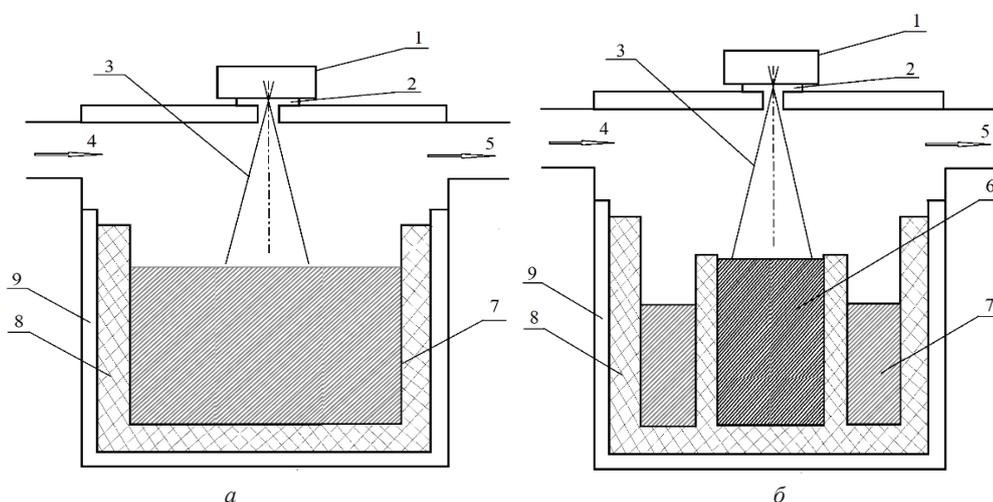


Рис. 2. Схематическое изображение установки с графитовыми тиглями: а – однозонный тигель: 1 – выпуск электронного пучка; 2 – диафрагма; 3 – электронный пучок; 4 – вход транспортного газа аргона; 5 – выход аргона с наночастицами; 7 – латунь; 8 – тигель; б – двухзонный тигель: 1 – выпуск электронного пучка; 2 – диафрагма; 3 – электронный пучок; 4 – вход транспортного газа аргона; 5 – выход аргона с наночастицами; 6 – медь; 7 – латунь; 8 – тигель; 9 – корпус сублиматора с водоохлаждаемыми стенками

Fig. 2. Schematic representation of the installation with graphite crucibles: а – single-zone crucible: 1 – electron beam outlet; 2 – diaphragm; 3 – electron beam; 4 – argon transport gas inlet; 5 – argon outlet with nanoparticles; 7 – brass; 8 – crucible; б – two-zone crucible: 1 – electron beam outlet; 2 – diaphragm; 3 – electron beam; 4 – argon transport gas inlet; 5 – argon outlet with nanoparticles; 6 – copper; 7 – brass; 8 – crucible; 9 – sublimator housing with water-cooled walls

На периферии двухзонного тигля латунь достигает температуры плавления сплава, достаточной для интенсивного испарения цинка из расплавленной латуни. У разных металлов критическая температура различается, поэтому плавление кристаллической решетки у латуни осуществляется неравномерно и плавящийся металл будет представлять собой амальгаму жидких и твердых элементов. У латуни, согласно фазовой диаграмме, при 63 % меди точка солидуса составляет +900 °С (начинает плавиться цинк), ликвидус находится на уровне +910 °С, а температура кипения цинка составляет 907 °С. Поэтому как только слиток латуни расплавляется,

из него начинает активно испаряться цинк. В испарительной камере создается необходимое соотношение атомов меди и цинка для образования наночастиц латуни.

Проведена серия запусков установки, в которой один образец латунной мишени неоднократно расплавлялся и испарялся в однозонном тигле, при этом происходило постепенное испарение цинка из мишени. Всего было проведено восемь пусков ускорителя электронов для облучения латунной мишени в однозонном тигле и один запуск с двухзонным тиглем. На первом запуске из серии с однозонным тиглем образовался порошок серо-голубого цвета, соответствующий оксиду цинка. На дне бокс-фильтра собрался нессыпучий материал и сохранял форму в виде ватного комка. Фотографии полученных нанопорошков после поэтапного облучения латунной мишени в однозонном тигле с номерами запусков ускорителя (1–8) и с применением двухзонного тигля представлены на рис. 3. На каждом следующем запуске наблюдалось изменение цвета порошка на тон теплее, визуальное свидетельство об увеличении концентрации меди в порошке. Последние образцы в этой линии – достаточно сыпучие и имеют бордовый цвет (рис. 3, а, номера пусков 5–8), соответствующий полученным частицам меди в [6]. С двухзонного тигля получен порошок (рис. 3, б) аналогичный по цвету номерам пуска 7–8 с однозонного тигля. Выход наночастиц латуни – не менее 280 г/ч.

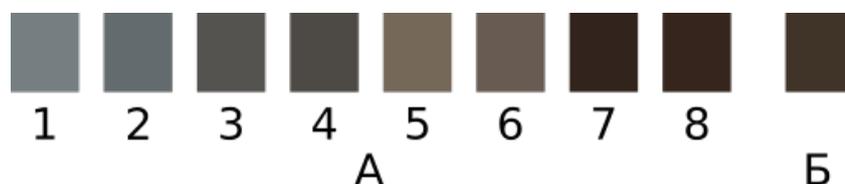


Рис. 3. Цвет порошков: А – полученных в однозонном тигле с порядковым номером пуска; Б – полученного в двухзонном тигле
Fig. 3. The color of the powders: А – obtained in a single-zone crucible with a start serial number; Б – obtained in a two-zone crucible

Образцы нанопорошков исследовались методом рентгенофазового анализа (РФА), для проведения РФА использовался рентгеновский дифрактометр HZG-4 (Фрайберг, Германия) с недублетным $\text{CuK}\beta$ -излучением, морфология полученных частиц изучалась с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Элементный анализ получен методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДС). Удельную поверхность порошков поверхности определяли методом БЭТ.

Результаты и обсуждение

В экспериментах в первых пусках ускорителя в схеме с однозонным тиглем образуются наночастицы различной формы: пластинчатой, игольчатой, шарообразной и ограненной, как показала ПЭМ (рис. 4).

При этом пластинчатые и стержневые по форме частицы характерны цинковым наноструктурам (рис. 4, а–в), медные наночастицы принимают шарообразную форму (рис. 4, г, д). Как правило, шарообразные наночастицы не обладают монокристаллической структурой. Предполагается, что пластинчатая наночастица цинка обладает монокристаллической структурой. На рис. 5 даны ПЭМ пластинчатой наночастицы цинка и ЭДС порошка с первого запуска ускорителя в схеме с однозонным тиглем, показывающим высокое содержание цинка в наночастице.

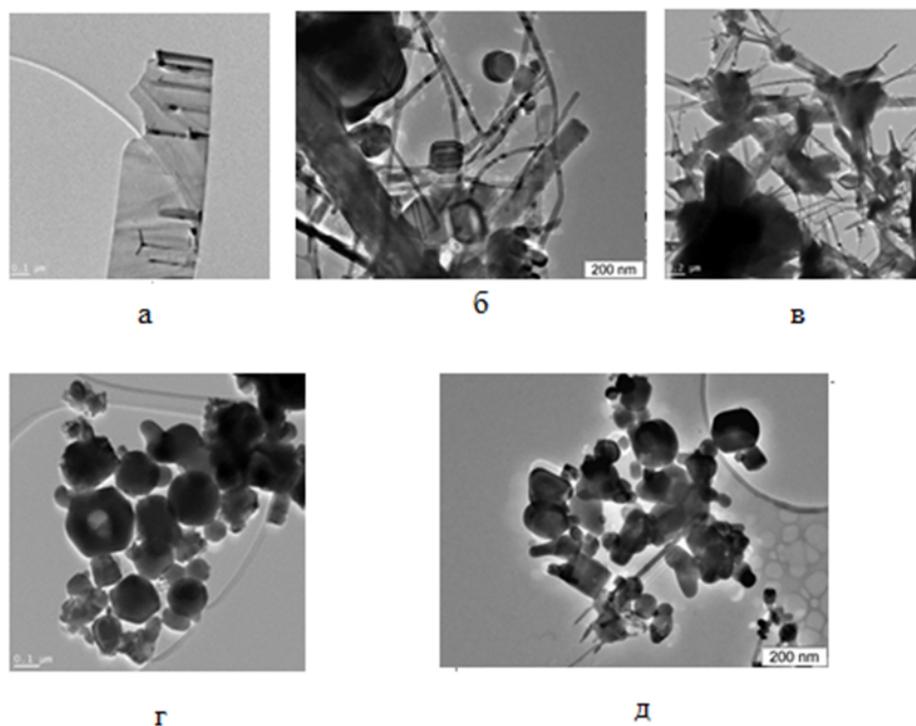


Рис. 4. ПЭМ полученных нанопорошков, созданных в однозонном тигле: а – пуск 1; б – 2; в – 3; г – 6; д – пуск 8

Fig. 4. TEM of obtained nanopowders created in a single-zone crucible: а – run 1; б – second run 2; в – run 3; г – run 6; д – run 8

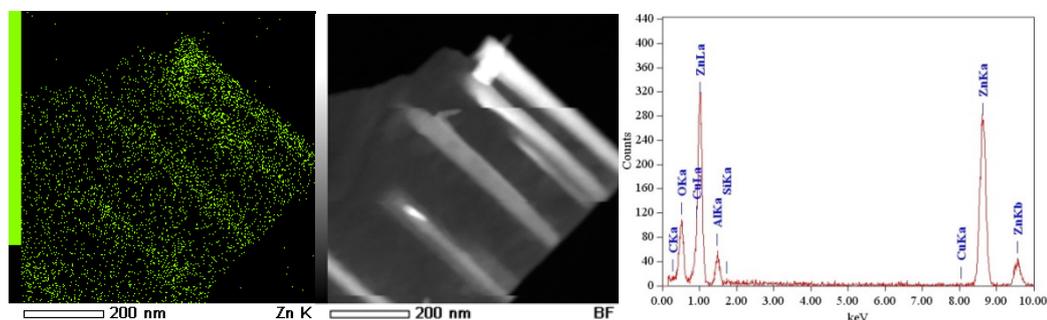


Рис. 5. ПЭМ и ЭДС порошка с первого запуска ускорителя с однозонным тиглем

Fig. 5. TEM and EDX dispersive analysis of powder from first run of the accelerator with a single-zone crucible

Обычно для поддержания и манипулирования образцами в ПЭМ используются медные сетки. Если в исследуемых образцах также присутствует медь, фон медного сигнала может привести к неоднозначным результатам. Данная проблема может быть устранена с помощью использования сетки, изготовленной из другого элемента (например, молибдена, алюминия или никеля) [7; 8]. Для исследования полученных образцов использовали сетки-подложки из алюминия, которые дают фоновые алюминиевые пики, наблюдаемые на результатах ЭДС.

Кристаллы растут с новыми слоями на своей поверхности; рост в виде сферы в этом случае энергетически невыгоден. Наиболее типична для оксида цинка структура вюрцита, которую можно представить в виде гексагональной плотной упаковки анионов, где катионы равно-

мерно занимают половину всех тетраэдрических пустот [5; 9]. Для наночастиц оксида цинка энергетически более выгодно выращивать кристалл вдоль предпочтительного направления роста, чем образовывать сферические наночастицы, которые часто создаются в экспериментах за счет увеличения доли поверхностной энергии при уменьшении размера. Другими словами, полная энергия наночастицы при росте кристалла вдоль выбранного направления роста меньше, чем при формировании сферической наночастицы [10; 11].

В запуске 7 на изображениях ПЭМ наблюдаются ограненные и сферические наночастицы меди, игольчатые частицы ZnO отсутствуют. Однако РФА показывает наличие в составе образовавшихся частиц Cu, CuO и небольшое (5,77 ат. %) количество ZnO (см. таблицу).

Из количественного ЭДС следует, что в каждом последующем пуске содержание меди увеличивается, а содержание цинка уменьшается. Композитные наночастицы Cu/Zn обнаружены методом ЭДС на снимках картирования на последних пусках после завершения интенсивного испарения цинка из расплава латуни. Предполагаем, что композитные наночастицы Cu/Zn создаются в результате конденсации частиц меди на отдельных частицах цинка, которые вследствие низкой концентрации паров цинка не образовали тонких волокон или игольчатой структуры. Наиболее вероятно, что в испарительной камере находится недостаточное количество цинка для роста монокристалла в виде стержня. ЭДС этих частиц показал, что цинк концентрируется в центре, а медь – по периферии частиц. Кислород равномерно распределен по всей поверхности частицы, т. е. оксид меди находится на поверхности частицы. Поэтому ядро частиц состоит из атомов оксида цинка, а оболочка – из оксида меди. Окисление наночастиц происходит после их извлечения из бокс-фильтра. После испарения цинка из латунной мишени под электронным облучением образуются в основном наночастицы меди в однозонном тигле в 8-м запуске, как показывает ПЭМ. По данным ЭДС, содержание меди такого порошка – около 98 ат. %, цинка – около 2 ат. %.

На рис. 6 представлен график изменения концентрации цинка в мишени при поэтапном облучении латуни в однозонном тигле. По оси абсцисс введенная в слиток суммарная энергия с учетом предыдущих пусков. Суммируется интеграл мощности пучка с вычетом теплотерь через охлаждение.

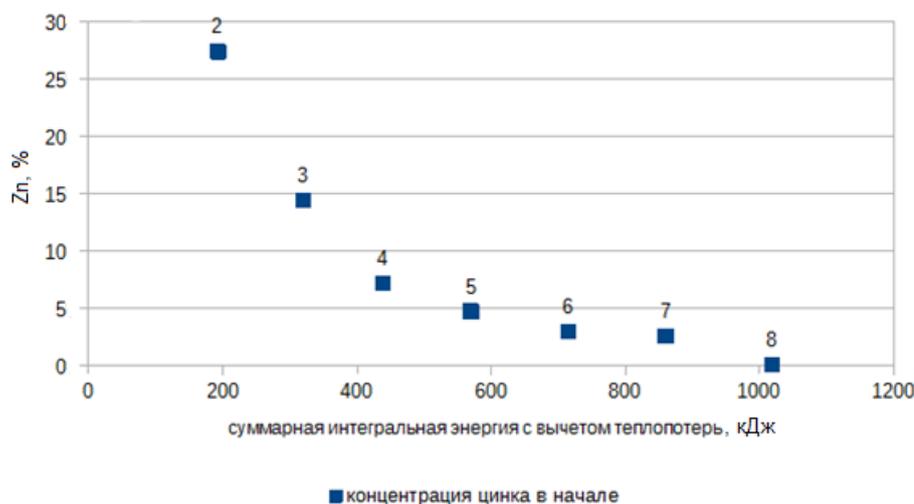


Рис. 6. График изменения концентрации цинка в мишени при поэтапном облучении латуни в однозонном тигле

Fig. 6. Graph of the change in the composition of the target during the gradual irradiation of brass in a single-zone crucible

Средняя производительность нанопорошка с использованием однозонного тигля составила 10,3 гр/мин. Объединенные данные качественного РФА созданных нанопорошков по однозонной и двухзонной схемам тиглей представлены в таблице. Показан состав и содержание веществ в нанопорошках, содержащих оксиды цинка, меди и гамма-латуни Cu_5Zn_8 , полученных по схемам однозонного и двухзонного тиглей.

Состав и содержание веществ в нанопорошках, полученных по схемам однозонного и двухзонного тиглей в разных пусках ускорителя, определенные по дифракционной картине смеси фаз РФА

The composition and content of substances in nanopowders obtained according to the schemes of single-zone and two-zone crucibles in different starts of the accelerator, determined from the diffraction pattern of the mixture of XRD phases

Характеристика нанопорошка	Вид тигля			
	Однозонный			Двухзонный
	1-й запуск	6-й запуск	8-й запуск	
Состав нанопорошка	ZnO Cu	ZnO Cu CuO	Cu ₂ O Cu CuO	ZnO Cu Cu ₅ Zn ₈

В запуске 1 с однозонным тиглем РФА показало содержание ZnO в полученном порошке не менее 95 %, что свидетельствует об интенсивном испарении цинка из расплава, а наличие в порошке Cu менее 5 % показывает незначительное испарение меди с поверхности расплава. В запуске 6 наблюдается пропорциональное количество ZnO и Cu. Содержание CuO не более 5 %, возможно, образовано частичным окислением Cu при разгерметизации установки в момент изъятия порошка. В запуске 8 получили порошок, состоящий на 95 % из Cu₂O и Cu и, как в запуске 6, присутствует не более 5 % CuO [12].

Эксперимент с двухзонным тиглем показал, что под облучением меди в центральной части тигля и находящейся на периферии латуни образуются нанопорошки, содержащие, по данным РФА, наночастицы латуни Cu_5Zn_8 (γ -фаза) – не более 25 мол. %, меди – не менее 50 мол. % и оксида цинка – не более 25 мол. %. ПЭМ и ЭДС приведены на рис. 7.

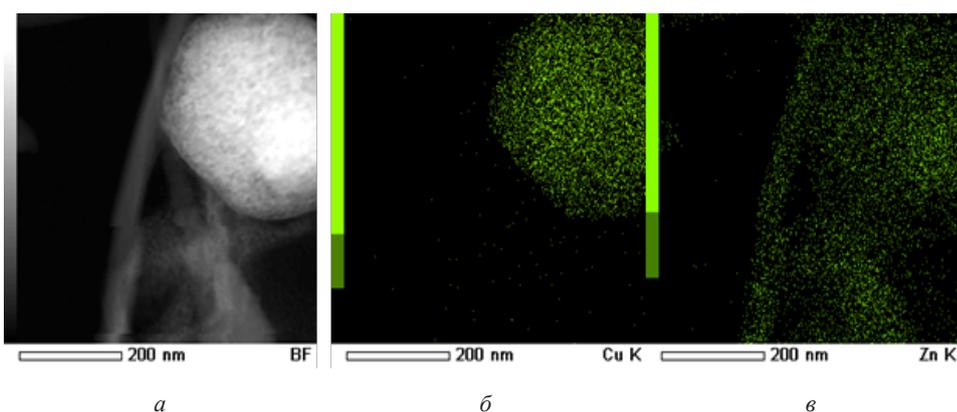


Рис. 7. ПЭМ-изображение (а) и ЭДС композитного нанопорошка (б, в), содержащего латунные наночастицы Cu_5Zn_8 , полученного при облучении меди и латуни в двухзонном тигле
Fig. 7. TEM image (a) and EDX of a composite nanopowder (b, v) containing brass Cu_5Zn_8 nanoparticles obtained by irradiating copper and brass in a two-zone crucible

Производительность нанопорошка с использованием двухзонного тигля составила 19,4 гр/мин. Средний размерный параметр наночастиц этого порошка рассчитан из измерений удельной поверхности. В приближении одинакового размера и сферической формы всех частиц известна связь между удельной поверхностью $S_{уд}$ и средним размером частиц d , где ρ – плотность латуни, равная $8,5 \cdot 10^3$ кг/м³, $S_{уд} = 5,6$ м²/г, $d = 126$ нм. Это позволяет отнести полученные порошки к наноразмерным. В соответствии с диаграммой состояния системы медь-цинк (Cu-Zn) γ -фаза латуни – электронное соединение Cu_5Zn_8 [13–15].

Судя по форме и характеристикам оксидных частиц, полученных в более ранних работах нашей научной группы (диоксид кремния, оксид алюминия), формирование частиц происходит очень быстро. При этом, по сути, минует жидкая фаза, т. е. переход идет газ – твердое тело. Но для металлов это уже не так очевидно. По нашему предположению, ограненные и сферические частицы формируются описанными далее механизмами. Во-первых, из-за размеров частиц и активного кипения можно предположить выход частиц по механизму абляции, т. е. отрыву участков кипящей поверхности. Во-вторых, мы видим изменение стехиометрии частиц, сопутствующее изменению стехиометрии слитка, что говорит об изначальном формировании жидких частиц расплава. В-третьих, теплопроводность меди, являющейся базовым веществом в данной ситуации, крайне высока и препятствует получению градиента температур даже в расплаве, что свидетельствует о равномерном нагреве образующихся наночастиц. В-четвертых, темпы охлаждения в данной конфигурации ниже из-за ограничений на использование инертного газа (массовый расход газа носителя мал по сравнению с расходом атмосферного воздуха при получении частиц оксидов). Наличием жидкой фазы при формировании частиц также объясняется их форма – при остывании жидкой фазы успевает устанавливаться ближний и дальний порядок кристаллической решетки и частицы подстраивают свою форму под параметры этой решетки (кубические частицы). Однако при испарении в двухзонном тигле мы также получаем частицы латуни, что говорит о том, что частицы меди, испаренные из центральной зоны, впитывают пары или частицы цинка, испаряемые с периферийной зоны. Таким образом, можно сказать, что данная конфигурация изменяет характер формирования частиц и, возможно, варьированием конфигурации зон можно получить информацию о фазовых переходах в процессе формирования наночастицы.

Заключение

При получении наночастиц использовались сходные по интегральной внесенной мощности (порядка 7 МДж энергии) производственные запуски. В первом способе, т. е. в серии запусков с однозонным тиглем, последовательно использовался один и тот же испаряемый слиток, в котором постепенно менялась стехиометрия от латуни до почти чистой меди. Во втором способе энергия вносилась в двухзонный тигель. В результате удалось сравнить производительность и качество получаемого наноматериала для двух способов получения наночастиц латуни. Производительность первого способа в среднем 10,3 гр/мин, при этом получают частицы латуни с неравномерным распределением меди и цинка. Производительность второго – 19,4 гр/мин, при этом стехиометрия частиц более однородная. Кроме этого, для реализации первого метода исходно проводилось обеднение слитка цинком, на что была затрачена энергия, и тем самым производительность способа реально ниже. Реализация второго способа привела к разрушению тигля при остывании, что также говорит о необходимости его модификации.

Работа выполнена в ИЯФ СО РАН с использованием установки УНУ Стенд ЭЛВ-6.

Список литературы

1. **Lozhkomyev A. S., Bakina O. V., Pervikov A. V., Kazantsev S. O., Glazkova E. A.** Synthesis of CuO–ZnO composite nanoparticles by electrical explosion of wires and their antibacterial activities // *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*. 2019. Vol. 30, iss. 14. P. 13209–13216.
2. **Sabbouh M., Nikitina A., Rogacheva E., Kraeva L., Ulasevich S., Skorb E., Nosonovsky M.** Separation of motions and vibrational separation of fractions for biocide brass // *Ultrasonics Sonochemistry*. 2021. Vol. 80, iss. 2073. P. 105817-1-105817-8.
3. **Казакевич П. В., Воронов В. В., Симакин А. В., Шафеев Г. А.** Образование наночастиц меди и латуни при лазерной абляции в жидкости // *Квантовая электроника*. 2004. Т. 34, № 10. С. 951–956.
4. **Бардаханов С. П., Корчагин А. И., Куксанов Н. К., Лаврухин А. В., Салимов Р. А., Фадеев С. Н., Черепков В. В.** Получение нанопорошков испарением исходных веществ на ускорителе электронов при атмосферном давлении // *Доклады Академии наук*. 2006. Т. 409, №3. С. 320–323.
5. **Yumozhapova N. V., Nomoev A. V., Syzrantsev V. V., Khartaeva E. Ch.** Formation of metal/semiconductor Cu-Si composite nanostructures // *Beilstein Journal of Nanotechnology*. 2019. Vol. 10, iss. 1. P. 2497–2504.
6. **Nomoev A. V., Khartaeva E. Ch., Yumozhapova N. V., Darmaev T. G., Bardakhanov S. P., Syzrantsev V. V., Zobov K. V., Gafner Y. Y.** Receiving copper nanoparticles: experiment and modelling // *Solid State Phenomena*. 2019. Vol. 288. P. 140–147.
7. **Ross J.** *Microelectronics Failure Analysis Desc Reference*. Sixth Edition. USA, ASM International, 2011. 660 p.
8. **Синдо Д., Ойкава Т.** Аналитическая просвечивающая электронная микроскопия. М.: Техносфера, 2006. 256 с.
9. **Nomoev A. V., Bardakhanov S. P., Schreiber M., Bazarova D. Z., Baldanov B. B., Romanov N. A.** Synthesis, Characterization, and Mechanism of Formation of Janus-Like Nanoparticles of Tantalum Silicide-Silicon (TaSi₂/Si) // *Nanomaterials*. 2014. Vol. 5, iss. 1. P. 26–35.
10. **Ellmer K.** *Transparent Conductive Zinc Oxide and Its Derivatives* // *Handbook of Transparent Conductors*; ed. by D. S. Ginley, H. Hosono, D. C. Paine. New York: Springer, 2010. P. 193–263.
11. **Yamashita T., Hansson R., Hayes P. C.** The relationships between microstructure and crystal structure in zincite solid solutions // *Journal of Materials Science*. 2006. Vol. 41, iss. 17. P. 5559–5568.
12. **Khartaeva E. Ch., Bardakhanov S. P., Nomoev A. V., Zobov K. V., Trufanov D. Yu.** Nanopowders created by irradiating brass with relativistic electrons. *Materials Science Forum*, 2023. Vol. 1083. P. 61–69.
13. **Банних О. А., Будберг П. Б., Алисова С. П. и др.** *Диаграммы состояния двойных и многокомпонентных систем на основе железа*. М.: Металлургия, 1986. 224 с.
14. **Шухардина С. В.** *Двойные и многокомпонентные системы на основе меди*. М.: Наука, 1979. 248 с.
15. **Лякишев Н. П.** *Диаграммы состояния двойных металлических систем*. М.: Машиностроение, 1996. 1238 с.

References

1. **Lozhkomyev A. S., Bakina O. V., Pervikov A. V., Kazantsev S. O., Glazkova E. A.** Synthesis of CuOZnO composite nanoparticles by electrical explosion of wires and their antibacterial activities. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2019, vol. 30, issue 14, pp. 13209–13216.

2. **Sabbouh M., Nikitina A., Rogacheva E., Kraeva L., Ulasevich S., Skorb E., Nosonovsky M.** Separation of motions and vibrational separation of fractions for biocide brass. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2021, vol. 80, issue 2073, pp. 105817-1-105817-8.
3. **Kazakevich P. V., Voronov V. V., Simakin A. V., Shafeev G. A.** Production of copper and brass nanoparticles upon laser ablation in liquids. *Quantum Electronics*, vol. 34, issue 10, pp. 951–956.
4. **Bardakhanov S. P., Korchagin A. I., Kuksanov N. K., Lavrukhin A. V., Salimov R. A., Fadeev S. N., Cherepkov V. V.** Nanopowders obtained by evaporating initial substances in an electron accelerator at atmospheric pressure. *Doklady Physics*, 2006, vol. 51, issue 7, pp. 353–356.
5. **Yumozhapova N. V., Nomoev A. V., Syzrantsev V. V., Khartaeva E. Ch.** Formation of metal/semiconductor Cu-Si composite nanostructures. *Beilstein Journal of Nanotechnology*, 2019, vol. 10, issue 1, pp. 2497–2504.
6. **Nomoev A. V., Khartaeva E. Ch., Yumozhapova N. V., Darmaev T. G., Bardakhanov S. P., Syzrantsev V. V., Zobov K. V., Gafner Y. Y.** Receiving copper nanoparticles: experiment and modelling. *Solid State Phenomena*, 2019, vol. 288, pp. 140–147.
7. **Ross J.** Microelectronics Failure Analysis Desc Reference. Sixth Edition. USA, ASM International, 2011, 660 p.
8. **Shindo D., Oikawa T.** Analytical transmission electron microscopy. Moscow, Technosfera, 2006, 256 p.
9. **Nomoev A. V., Bardakhanov S. P., Schreiber M., Bazarova D. Z., Baldanov B. B., Romanov N. A.** Synthesis, Characterization, and Mechanism of Formation of Janus-Like Nanoparticles of Tantalum Silicide-Silicon ($TaSi_2/Si$). *Nanomaterials*, 2014, vol. 5, issue 1, pp. 26–35.
10. **Ellmer K.** Transparent Conductive Zinc Oxide and Its Derivatives. *Handbook of Transparent Conductors*; ed. by D.S. Ginley, H. Hosono, D.C. Paine. New York, Springer, 2010, pp. 193–263.
11. **Yamashita T., Hansson R., Hayes P. C.** The relationships between microstructure and crystal structure in zincite solid solutions. *Journal of Materials Science*, 2006, vol. 41, issue 17, pp. 5559–5568.
12. **Khartaeva E. Ch., Bardakhanov S. P., Nomoev A. V., Zobov K. V., Trufanov D. Yu.** Nanopowders created by irradiating brass with relativistic electrons. *Materials Science Forum*, 2023, vol. 1083, pp. 61–69.
13. **Bannykh O. A., Budberg P. B., Alisova S. P. et al.** State diagrams of binary and multicomponent systems based on iron. Moscow, Metallurgy Publ., 1986, 224 p. (in Russ.)
14. **Shukhardina S. V.** Dual and multi-component systems based on copper. Moscow, Science Publ., 1979, 248 p. (in Russ.)
15. **Lyakishev N. P.** State Diagrams of Binary Metal Systems. Moscow, Mechanical engineering Publ., 1996, 1238 p. (in Russ.)

Информация об авторах

Эржена Чимитдоржиевна Хартаева, научный сотрудник

Андрей Валерьевич Номоев, доктор физико-математических наук

Сергей Прокопьевич Бардаханов, доктор физико-математических наук, профессор

Константин Владимирович Зобов, кандидат физико-математических наук

Дмитрий Юрьевич Труфанов, кандидат физико-математических наук

Василий Рудольфович Гапоненко, кандидат физико-математических наук

Дамдин Галсанович Цыдыпов, инженер

Information about the Authors

Erzhena Ch. Khartaeva, Researcher

Andrey Valer'evich Nomoev, Doctor of Physical and Mathematical Sciences

Sergey P. Bardakhanov, Doctor of Physical and Mathematical Sciences

Konstantin V. Zobov, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Dmitriy Yu. Trufanov, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Vasiliy R. Gaponenko, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Damdin G. Tsydypov, Engineer

*Статья поступила в редакцию 28.09.2023; одобрена после рецензирования 28.09.2023;
принята к публикации 28.09.2023*

*The article was submitted 28.09.2023; approved after reviewing 28.09.2023;
accepted for publication on 28.09.2023*

Научная статья

УДК 662.767

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-95-103

Получение водорода термokatалитическим разложением метана с использованием катализатора «никель на кизельгуре»

Юрий Валериевич Желнов¹, Виктор Дмитриевич Долгих²,
Сергей Анатольевич Иванов³, Маргарита Рудольфовна Виноградова⁴,
Наталья Витальевна Мелешко⁵, Игорь Васильевич Кудинов⁶

Самарский государственный технический университет,
Самара, Россия

¹deorg@mail.ru, <https://orcid.org/0009-0001-6075-7465>
²torressva12@yandex.ru, <https://orcid.org/0000-0003-1505-3810>
³ivsa73@mail.ru
⁴fizikasgtu@yandex.ru
⁵meleshko1958@gmail.com
⁶igor-kudinov@bk.ru, <https://orcid.org/0000-0002-9422-0367>

Аннотация

В работе исследован процесс получения водорода вследствие термokatалитического разложения метана с применением катализатора «никель на кизельгуре» на подложке из кварцевого песка толщиной 1 см вида «песок – катализатор – песок». В результате эксперимента получена зависимость процентного выхода водорода от температуры. Диапазон исследуемых температур от 530 до 770 °С. В итоге удалось получить 68 % содержания водорода в газовой смеси на выходе из реактора при температуре 770 °С и расходе метана 2 л/ч.

Ключевые слова

производство водорода, производство углерода, пиролиз метана

Благодарности

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема № FSSE-2023-0003) в рамках государственного задания Самарского государственного технического университета.

Для цитирования

Желнов Ю. В., Долгих В. Д., Иванов С. А., Виноградова М. Р., Мелешко Н. В., Кудинов И. В. Получение водорода термokatалитическим разложением метана с использованием катализатора «никель на кизельгуре» // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 95–103. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-95-103

Obtaining Hydrogen by Thermocatalytic Decomposition of Methane Using a Catalyst ‘Nickel on Kieselgur’

Yuri V. Zhelnov, Viktor D. Dolgikh, Sergey A. Ivanov, Margarita R. Vinogradova,
Natalya V. Meleshko, Igor V. Kudinov

Samara State Technical University,
Samara, Russian Federation

¹deorg@mail.ru, <https://orcid.org/0009-0001-6075-7465>
²torressva12@yandex.ru, <https://orcid.org/0000-0003-1505-3810>

³ivsa73@mail.ru

⁴fizikasgtu@yandex.ru

⁵meleshko1958@gmail.com

⁶igor-kudinov@bk.ru, <https://orcid.org/0000-0002-9422-0367>

Annotation

The process of hydrogen production through thermocatalytic decomposition of methane using a “nickel on kieselgur” catalyst on a quartz sand substrate with a thickness of 1 cm in the “sand-catalyst-sand” configuration was investigated in this work. The experimental results revealed a dependence of the percentage yield of hydrogen on temperature within the temperature range of 530°C to 770°C. As a result, a hydrogen content of 68% in the gas mixture was achieved at the reactor outlet under the conditions of 770°C temperature and a methane flow rate of 2 l/h.

Keywords

hydrogen production, carbon production, methane pyrolysis

Funding

The work was supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (theme No. FSSE-2023-0003) as part of the state task of the Samara State Technical University.

For citation

Zhelnov Y. V., Dolgikh V. D., Ivanov S. A., Vinogradova M. R., Meleshko N. V., Kudinov I. V. Obtaining hydrogen by thermocatalytic decomposition of methane using a catalyst ‘nickel on kieselgur’. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 95–103 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-95-103

Введение

В мире все больше набирает популярность тренд на декарбонизацию экономики. А все возрастающая потребность в дополнительной энергии заставляет разрабатывать механизмы перехода от ископаемого топлива к экологически более безопасным энергоносителям, например, водороду. Поэтому 8 июля 2020 года Европейская комиссия опубликовала Стратегию в области водорода [1]. Производство водорода осуществляется несколькими путями, включая паровой риформинг метана, частичное окисление углеводородов, крекинг метана, газификацию угля и электролиз воды. Однако в большинстве этих процессов происходит выброс CO/CO₂, что усиливает парниковый эффект [2; 3].

Хотя паровой риформинг метана (1) производит больше водорода на моль метана, чем другие реакции (2), (3), выбросы CO₂ по-прежнему являются основным недостатком. Один килограмм водорода, получаемого с помощью парового риформинга природного газа, сопровождается образованием порядка 9 кг CO₂ [1]. CO₂ должен улавливаться и удерживаться под землей в хранилищах на отдаленных ненаселенных территориях, что влечет дополнительные капитальные и эксплуатационные затраты. Более того, современные методы секвестрации CO₂ недостаточно эффективны для длительного и безопасного хранения.



где ΔH – изменение энтальпии реакции.

В долгосрочной перспективе все производство водорода может происходить за счет расщепления воды путем электролиза, фотоэлектролиза или термолиза через многоступенчатые

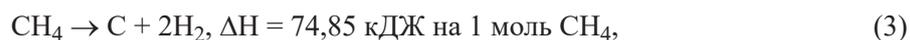
циклы (2), поскольку это процесс с нулевым выбросом CO/CO₂, если он основан на использовании возобновляемых ресурсов (например, ветер, солнце и т. д.) [4]. Однако в настоящее время электролиз воды все еще достаточно неэкономичен, чтобы вытеснить другие способы производства H₂. Он составляет всего 4 % от общего мирового производства водорода из-за высокой стоимости. Требуется от 48 до 78 кВт·ч дорогой возобновляемой электрической энергии на 1 кг полученного водорода [3].



где ΔH – изменение энтальпии реакции.

Существенным преимуществом пиролиза метана является меньший удельный расход электроэнергии (оценивается менее 20 кВт·ч на килограмм водорода) в сравнении, например, с электролизом воды (от 48 до 78 кВт·ч) [5]. Пиролиз метана имеет преимущества с экономической точки зрения. При оценочных затратах на производство 1 кг водорода 1.36–1.79 \$ (в зависимости от типа процесса) с учетом коммерческой реализации углерода пиролиз метана конкурирует с электролизом (4.61–14.87 \$ / кг H₂) и паровым риформингом (1.03–2.16 \$ / кг H₂) [6]. Водород, производимый пиролизом метана, отличается наименьшей стоимостью среди низкоуглеродного и возобновляемого водорода.

Хотя в настоящее время большая часть водорода производится с помощью технологий, выделяющих CO/CO₂ (48 % с помощью парового риформинга метана, 30 % за счет частичного окисления углеводородов, 18 % из газификации угля) [7], пиролиз метана в последнее время привлек особое внимание, потому что это процесс с нулевым выбросом CO/CO₂ (3). Следовательно, пиролиз метана устраняет необходимость улавливания и связывания оксидов углерода. Единственным побочным продуктом, получаемым в данном случае, является твердый углерод, который является ценным сырьем и может быть коммерциализирован. Его можно использовать во многих областях, таких как двухслойные конденсаторы, полимеры (например, резиновая арматура для шинной промышленности), композиты на основе углеродных нановолокон, предшественники графитовых материалов, которые будут использоваться в качестве анодов в литий-ионных батареях, и др. Однако текущий рынок углерода все еще сильно ограничен, и большая часть побочных углеродных продуктов должна храниться до тех пор, пока не будут найдены новые области применения [8].



где ΔH – изменение энтальпии реакции.

Пиролиз метана – это эндотермическая реакция, протекающая при высоких температурах. Согласно теоретическим оценкам, при температурах свыше 300 °C метан начинает разлагаться на твердые углеродные частицы и газообразный H₂ без какого-либо катализатора. Однако при таких низких температурах конверсия будет незначительной. Достаточно высокая конверсия при некаталитическом крекинге метана может быть достигнута при температурах свыше 1200 °C из-за кинетических ограничений и высокой энергии активации, необходимой для разрыва стабильных связей C – H в молекулах метана. Эта энергия активации варьируется в литературе от 356 до 452 кДж/моль [9–11]. Таким образом, добавление катализатора может значительно снизить энергию активации до диапазона 205–236 кДж/моль для углеродсодержащих катализаторов и даже ниже для твердых переходных металлов, таких как никель без подложки (96,1 кДж/моль). Следовательно, каталитическое разложение метана происходит при температуре в диапазоне 600–900 °C, что аналогично паровому риформингу метана [12].

За последние десятилетия было проведено множество экспериментальных исследований с использованием металлов (Ni, Fe, Co, Cu и др.) [13–16] и углеродистых катализаторов [17] для снижения энергии активации реакции. Хотя некоторые из этих катализаторов обладают хорошей каталитической активностью, они часто дезактивируются при коксовании. Некоторые

металлы, такие как Ni, дороги, и поскольку регенерация не идеальна, практически невозможно восстановить первоначальную активность катализатора из-за деформации поверхностей и пор и следов углеродных примесей, которые остаются внутри [18]. Хотя углеродсодержащие катализаторы теоретически не требуют регенерации, их каталитическая активность также уменьшается через несколько часов работы [12]. Кроме того, независимо от того, катализируется ли пиролиз метана или нет, часто встречающейся проблемой является накопление отложений углерода на горячих стенках реактора, которые могут полностью засорить его через несколько часов работы. Эта проблема препятствует непрерывности и масштабируемости процесса.

В данной работе используется промышленный катализатор «никель на кизельгуре». Катализатор представляет собой основной карбонат никеля на кизельгуре с добавкой графита. Выпускается в неактивной (невосстановленной) форме, в виде зеленых таблеток цилиндрической формы. Диаметр таблеток 4 мм, высота 6 мм. Массовая доля никеля не менее 45 %. Обычно никель на кизельгуре применяется в нефтехимической и химической промышленности для гидрирования примесей ацетиленовых соединений в изопрене и бутадиене-1.3, примесей карбонильных соединений в бутаноле и других непредельных углеводородов; в сероочистке углеводородных и газовых потоков, без включения графита – в производстве душистых веществ, а также в пищевой промышленности для гидрирования растительных масел, животных жиров и жирных кислот – после того, как пройдет активацию (восстановление) при температуре 390–410 °С в присутствии водорода. В настоящей работе проведено экспериментальное исследование каталитической активности никеля на кизельгуре в процессе термического разложения метана.

Экспериментальные исследования

Описание лабораторной установки

Принципиальная технологическая схема лабораторной установки, на которой проводились опыты, представлена на рис. 1. Газ в систему подается по трубке 1. В блоке входного контроля параметров газа 2 установлен регулятор расхода газа, манометр и обратный клапан, для предотвращения изменения направления потока газа в системе. Блок 2 позволяет регулировать расход газа от 2 до 20 л/час и входное давление от 1 до 7 атм. В термопарный карман помещается термопара для измерения температуры в реакторе. Предохранительный клапан 4 предохраняет систему от избыточного давления в ходе реакции. На термопарный карман крепятся перфорированные диски 5, между которыми располагается подложка 6 и катализатор 7. С внешней стороны реактор покрыт слоем теплоизоляции 8. Температура внутри реактора поддерживается нагревательными элементами 9. Печь может нагревать газовую смесь до 1000 °С. Продукты реакции отводятся по трубке 10. Блок выходного контроля параметров газа 11 состоит из манометра для контроля выходного давления, сажеулавливателя, регулятора расхода газа, предохранительного клапана и хроматографа для изучения состава выходной газовой смеси.

Принцип работы

Первоначально во избежание аварийно-взрывоопасных ситуаций из системы необходимо удалить кислород. Поэтому система продувается инертным газом (азотом). Азот подается по трубке 1 в реактор. Количество остаточного кислорода в реакторе определяется отбором пробы на хроматографе в блоке выходного контроля 11. Пробы анализируются через определенные промежутки времени до полного освобождения системы от кислорода.

Спецификация

1. Трубка для подачи метана
2. Блок входного контроля параметров газа
3. Термопарный карман
4. Предохранительный клапан
5. Перфорированные диски для удержания подложки и катализатора
6. Подложка для катализатора (крупнодисперсный песок)
7. Катализатор
8. Слой тепловой изоляции
9. Нагревательный элемент
10. Трубка для отбора смеси газов
11. Блок выходного контроля параметров газа

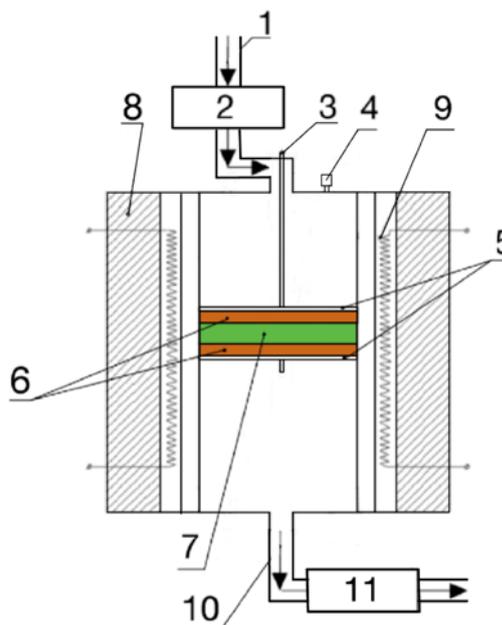


Рис. 1. Технологическая схема лабораторной установки
 Fig. 1. Technological diagram of the laboratory installation

После удаления кислорода из системы через трубку 1 прекращается подача азота и начинается подача метана. На протяжении всего эксперимента расход метана поддерживался на уровне 2 л/ч при входном давлении 3,7 атм. Давление на выходе из реактора было 3 атм. Все неизменные параметры эксперимента указаны в табл. 1. В процессе нагрева реактора в течение 3 часов было взято 6 проб продуктов реакции для анализа на хроматографе. Интервал между замерами составил 30 минут.

Таблица 1

Основные параметры эксперимента

Table 1

Main parameters of the experiment

Параметр	Значение
Входное давление метана	3,7 атм
Расход метана	2 л/ч
Выходное давление продуктов реакции	3 атм
Подложка	Крупнодисперсный песок
Катализатор	Никель на кизельгуре
Временной интервал между замерами	30 минут
Общее время эксперимента	3 часа

Результаты и обсуждение

По данным, приведенным в табл. 2 и на рис. 2, видно, что с ростом температуры существенно увеличивается процентный выход водорода. Наилучший результат был получен при температуре 770 °С. При этой температуре в выходящей смеси содержалось 68 % водорода. При этом следует отметить, что при увеличении температуры от 530 до 710 °С разложение метана идет

наиболее эффективно, т. е. рост содержания водорода соизмерим с уменьшением содержания метана в выходной смеси. А при повышении температуры выше 710 °С процентный выход водорода увеличивается незначительно, но на выходе существенно уменьшается содержание метана. То есть при температурах свыше 710 °С начинается более интенсивное образование промежуточных углеводородов.

Таблица 2

Результаты эксперимента

Table 2

Experimental results

Номер опыта	Температура в реакторе, °С	H ₂ , %	CH ₄ , %	N ₂ , %	C ₂ H ₆ , C ₂ H ₄ , C ₂ H ₂ , %
1	530	20,12	71,48	0,77	7,63
2	550	24,20	66,38	0,60	8,82
3	600	35,64	55,42	0,46	8,48
4	650	49,53	37,78	0,37	12,32
5	710	60,10	26,71	0,30	12,89
6	770	68,84	11,05	0,24	19,87

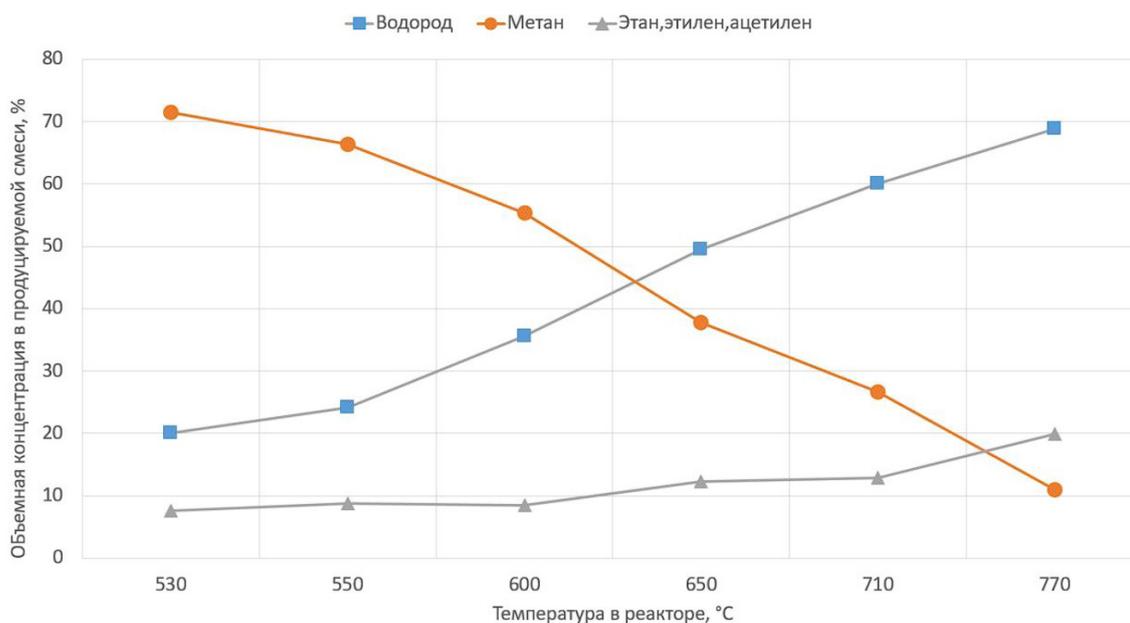


Рис. 2. Объемная концентрация продуктов реакции в зависимости от температуры
Fig. 2. Volume concentration of reaction products depending on temperature

В ходе эксперимента были отмечены некоторые сложности, которые затрудняли процесс пиролиза метана. Рассмотрим основные из них и возможные пути их решения:

1. На катализаторе осаждается твердый углерод, который блокирует доступ газа к катализатору. Это снижает каталитическую активность. Поэтому особый интерес представляют дальнейшие исследования по времени работы катализатора, т. е. необходимо дополнительное исследование каталитической активности катализатора при длительной работе реактора. Также

открытым остается вопрос исследования структуры получаемого твердого углерода для разработки методов его дальнейшего использования и коммерциализации.

2. Углерод осаждался не только на самом катализаторе, но и на стенках металлического реактора. Последующая очистка стенок реактора является сложной технологической задачей. Некоторые методы удаления твердого углерода из реактора описаны в работе [19]. Суть проблемы в том, что сам металлический корпус выступает в роли катализатора, что ускоряет образование твердого углерода на стенках реактора. Для предотвращения этого эффекта предполагается заменить металлический тигель на тигель из другого материала, например, из керамики. Это может существенно упростить процесс очистки реактора после эксперимента.

3. В данном эксперименте в качестве подложки для катализатора был использован песок, который при высоких температурах спекается с катализатором. Это затрудняет дальнейшее извлечение и очистку катализатора для дальнейшего восстановления.

Заключение

1. В результате эксперимента получена зависимость процентного выхода водорода от температуры. Диапазон исследуемых температур от 530 до 770 °C. Выход водорода составил 68 % при температуре 770 °C и расходе метана 2 л/ч.

2. С экологической стороны каталитический пиролиз метана является одним из наилучших методов получения водорода, поскольку никак не влияет на парниковый эффект за счет нулевого выброса CO/CO₂.

3. В ходе исследований каталитического крекинга метана с использованием твердых металлов была выявлена проблема, связанная с отложением твердых углеродных частиц на катализаторе и на внутренних поверхностях реактора. При длительной работе закоксовывание реактора может привести к аварийной остановке экспериментального стенда.

Список литературы / References

1. European Commission. Communication from the Commission to the European Parliament, the Council, the European economic and social committee and the committee of the regions. A hydrogen strategy for a climate-neutral Europe. Brussels, 2020.
2. **Pleshivtseva Y., Derevyanov M., Pimenov A., Rapoport A.** Comprehensive review of low carbon hydrogen projects towards the decarbonization pathway // *International Journal of Hydrogen Energy*. 2023. Vol. 48, iss. 10. P. 3703-3724.
3. **Pleshivtseva Y., Derevyanov M., Pimenov A., Rapoport A.** Comparative analysis of global trends in low carbon hydrogen production towards the decarbonization pathway // *International Journal of Hydrogen Energy*, <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2023.04.264>
4. **Louis Nazir H., Jose C., Prakash S., Muthuswamy J., Buan N., Flox M. E. M., Chavan C., Shi S., Kauranen X., et al.** Is the H₂ economy realizable in the foreseeable future? Part I: H₂ production methods // *Int. J. Hydrog. Energy*. 2020. Vol. 45. P. 13777–13788.
5. **Timmerberg S., Kaltschmitt M., Finkbeiner M.** Hydrogen and hydrogen-derived fuels through methane decomposition of natural gas – GHG emissions and costs // *Energy Conversion and Management: X*. 2020. Vol. 7. P. 100043.
6. **Parkinson B., Balcombe P., Speirs J. F., Hawkes A. D., Hellgardt K.** Levelized cost of CO₂ mitigation from hydrogen production routes // *Energy & Environmental Science*. 2019. Vol. 12, № 1. P. 19–40.
7. **Abánades Weger L., Butler A. T.** Methane cracking as a bridge technology to the hydrogen economy // *Int. J. Hydrog. Energy*. 2017. Vol. 42. P. 720–731.

8. **Dagle R. A., Dagle V., Bearden M. D., Holladay J. D., Krause T. R., Ahmed S.** An Overview of Natural Gas Conversion Technologies for Co-Production of Hydrogen and Value-Added Solid Carbon Products. Pacific Northwest National Lab: Richland, WA, USA, 2017.
9. **Keipi T., Tolvanen K. E. S., Tolvanen H., Konttinen J.** Thermo-catalytic decomposition of methane: The effect of reaction parameters on process design and the utilization possibilities of the produced carbon // *Energy Convers. Manag.* 2016. Vol. 126. P. 923–934.
10. **Sajid M.U., Bicer Y.** Thermodynamic assessment of chemical looping combustion and solar thermal methane cracking-based integrated system for green ammonia production // *Therm. Sci. Eng. Prog.* 2020. Vol. 19. P. 100588.
11. **Msheik M., Rodat S., Abanades S.** Methane Cracking for Hydrogen Production // *A Review of Catalytic and Molten Media Pyrolysis Energies.* 2021. Vol. 14, №. 11. P. 3107.
12. **Abánades A., Rubbia C., Salmieri D.** Technological challenges for industrial development of hydrogen production based on methane cracking // *Energy.* 2012. Vol. 46. P. 359–363.
13. **Ashik U. P. M., Wan Daud W. M. A., Abbas H. F.** Production of greenhouse gas free hydrogen by thermocatalytic decomposition of methane – A review. *Renew. Sustain // Energy Rev.* 2015. Vol. 44. P. 221–256.
14. **Pudukudy M., Yaakob Z., Jia Q., Sobri Takriff M.** Catalytic decomposition of undiluted methane into hydrogen and carbon nanotubes over Pt promoted Ni/CeO₂ catalysts // *New J. Chem.* 2018. Vol. 42. P. 14843–14856.
15. **Kopp M., Coleman D., Stiller C., Scheffer K., Aichinger J., Scheppat B.** Energiepark Mainz: Technical and economic analysis of the worldwide largest Power-to-Gas plant with PEM electrolysis // *Int. J. Hydrog. Energy.* 2017. Vol. 42. P. 13311–13320.
16. **Ayillath Kutteri D., Wang I.W., Samanta A., Li L., Hu J.** Methane decomposition to tip and base grown carbon nanotubes and CO_x-free H₂ over mono- and bimetallic 3d transition metal catalysts // *Catal. Sci. Technol.* 2018. Vol. 8. P. 858–869.
17. **Patel S., Kundu S., Halder P., Marzbali M.H., Chiang K., Surapaneni A., Shah K.** Production of hydrogen by catalytic methane decomposition using biochar and activated char produced from biosolids pyrolysis // *Int. J. Hydrog. Energy.* 2020. Vol. 45. P. 29978–29992.
18. **Abánades A., Rubbia C., Salmieri D.** Thermal cracking of methane into Hydrogen for a CO₂-free utilization of natural gas // *Int. J. Hydrog. Energy.* 2013. Vol. 38. P. 8491–8496.
19. **Kudinov I. V., Pimenov A. A., Kryukov Y. A., Mikheeva G. V.** A theoretical and experimental study on hydrodynamics, heat exchange and diffusion during methane pyrolysis in a layer of molten tin // *International Journal of Hydrogen Energy.* 2021. Vol. 46. P. 10183–10190.

Информация об авторах

Юрий Валериевич Желнов, кандидат физико-математических наук

Виктор Дмитриевич Долгих, аспирант

Сергей Анатольевич Иванов, кандидат педагогических наук

Маргарита Рудольфовна Виноградова, кандидат физико-математических наук

Наталья Витальевна Мелешко, старший преподаватель

Игорь Васильевич Кудинов, доктор технических наук

Information about the Authors

Yuri V. Zhelnov, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Viktor D. Dolgikh, Postgraduate

Sergey A. Ivanov, Candidate of Pedagogic Sciences

Margarita R. Vinogradova, Candidate of Physical and Mathematical Sciences

Natalya V. Meleshko, Senior Lecturer

Igor V. Kudinov, Doctor of Engineering Science

*Статья поступила в редакцию 28.09.2023; одобрена после рецензирования 10.11.2023;
принята к публикации 16.11.2023*

*The article was submitted 28.09.2023; approved after reviewing 10.11.2023;
accepted for publication on 16.11.2023*

Методические заметки

УДК 530.145.61

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-104-112

Вывод нестационарного уравнения Шрёдингера из стационарного

Николай Александрович Винокуров

Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН
Новосибирск, Россия

N.A.Vinokurov@inp.nsk.su, <https://orcid.org/0000-0003-1290-4018>

Аннотация

Рассмотрен вывод нестационарного уравнения Шрёдингера из стационарного. При этом вместо времени в нестационарном уравнении Шрёдингера входит координата дополнительной степени свободы – часов. Показано, что стандартное нестационарное уравнение Шрёдингера можно получить только для квазиклассических часов. Для выяснения физического смысла полученного таким образом уравнения обсуждаются различные виды часов. Кроме того, выводятся соответствующее уравнение для матрицы плотности и формулы для средних от операторов.

Ключевые слова

уравнение Шрёдингера, часы, квазиклассическое приближение

Для цитирования

Винокуров Н. А. Вывод нестационарного уравнения Шрёдингера из стационарного // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 104–112. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-104-112

Derivation of the non-stationary Schrödinger equation from the stationary one

Nikolay A. Vinokurov

Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS,
Novosibirsk, Russian Federation

N.A.Vinokurov@inp.nsk.su, <https://orcid.org/0000-0003-1290-4018>

Abstract

A derivation of the time-dependent Schrödinger equation from the time-independent one is considered. Instead of time, the coordinate of an additional degree of freedom, the clock, is introduced into the original time-independent Schrödinger equation. It is shown that the standard time-dependent Schrödinger equation can be obtained for the semiclassical clock only. For elucidation of the physical meaning of the equation obtained in this way, various types of clocks are discussed. In addition, the corresponding equation for the density matrix and formulas for the mean values of operators are derived.

Keywords

Schrödinger equation, clock, semiclassical approximation

© Винокуров Н. А., 2023

ISSN 2541-9447

Сибирский физический журнал. 2023. Том 18, № 3
Siberian Journal of Physics, 2023, vol. 18, no. 3

For citation

Vinokurov N. A. Derivation of the non-stationary Schrödinger equation from the stationary one. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 104–112 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-104-112

Введение

В статье «Квантование как задача на собственные значения» [1] Шрёдингер вывел уравнение для нахождения энергетических уровней, стационарное уравнение Шрёдингера (УШ), которое позволило описать спектр излучения атома водорода. После этого с помощью различных усовершенствований гамильтониана стационарного УШ было получено подробное описание спектров излучения и поглощения в разных условиях (например, эффектов Зеемана и Штарка, тонкой и сверхтонкой структуры линий, и др.). При этом проблема измерений при помощи макроскопических приборов практически не касается интерпретации спектров. Поэтому известные замечания [2] о неполноте квантовой механики не относятся к результатам, полученным при помощи стационарного УШ. Кроме того, спектры никак не связаны с интерпретациями квантовой механики и, в частности, с понятием вероятности. Математически это выражается в том, что спектр оператора энергии может быть найден без упоминания о волновой функции, как это и было сделано Паули и Дираком [3; 4]. В этом смысле можно сказать, что правильность стационарного УШ непосредственно подтверждена результатами экспериментов, и эта часть квантовой механики является полной.

Переход от стационарного УШ к нестационарному нетривиален (см., например, [5; 6]). Это отчасти связано с введением в уравнение времени, которое во многих отношениях отличается от координат.

В классической механике время часто заменяется координатой дополнительной степени свободы (часов), а закон движения заменяется описанием траектории в расширенном координатном пространстве, включающем координату часов. При этом динамическая задача сводится к геометрической. Это соответствует обычному восприятию времени, связанному с движением Земли и Солнца. Поэтому представляется естественным рассмотреть такой же подход в квантовой механике, т. е. ввести в стационарное УШ часы.

1. Простейшие часы

Рассмотрим стационарное уравнение Шрёдингера для изолированной консервативной системы, состоящей из некоторой подсистемы с обобщенными координатами $\mathbf{q} = (q_1, q_2, \dots, q_N)$ и гамильтонианом $H(p_1, p_2, \dots, p_N, q_1, q_2, \dots, q_N, q_c)$ и часов с гамильтонианом $H_c(p_c)$:

$$(H + H_c)\Psi = E\Psi, \quad (1)$$

где Ψ – волновая функция системы, E – полная энергия системы, а в качестве простейших часов используется нерелятивистская частица с координатой («часовой стрелки») q_c и массой M , т. е.

$$H_c = -\frac{\hbar^2}{2M} \frac{\partial^2}{\partial q_c^2}. \quad (2)$$

Тогда

$$\frac{\hbar^2}{2M} \frac{\partial^2}{\partial q_c^2} \Psi = (H - E)\Psi. \quad (3)$$

Подстановка

$$\Psi = \psi(\mathbf{q}, q_c) \exp \frac{i\sqrt{2ME}q_c}{\hbar} \quad (4)$$

дает

$$i\hbar \sqrt{\frac{2E}{M}} \frac{\partial}{\partial q_c} \psi + \frac{\hbar^2}{2M} \frac{\partial^2}{\partial q_c^2} \psi = H\psi, \quad (5)$$

или

$$i\hbar \sqrt{\frac{2E}{M}} \frac{\partial}{\partial q_c} \left(\psi - \frac{i\hbar}{2\sqrt{2ME}} \frac{\partial}{\partial q_c} \psi \right) = H\psi. \quad (6)$$

При

$$\left| \frac{\partial}{\partial q_c} \ln \psi \right| \ll \frac{2\sqrt{2ME}}{\hbar}, \quad (7)$$

т. е. при достаточно большом импульсе часов, можно пренебречь вторым членом в левой части (5) и получить нестационарное уравнение Шрёдингера:

$$i\hbar \sqrt{\frac{2E}{M}} \frac{\partial}{\partial q_c} \psi = H\psi \quad (8)$$

с «временем»

$$t = q_c \sqrt{\frac{M}{2E}}, \quad (9)$$

соответствующим скорости движения часов $\sqrt{2E/M}$. Если в качестве часов берется частица с достаточно большой энергией, то эта скорость почти совпадает со скоростью частицы. Условие (7) значит, что локализация часов Δq_c должна существенно превышать их дебройлевскую длину волны, т. е. часы должны быть квазиклассическими («макроскопическими»). При этом полная волновая функция Ψ (4) является произведением плавной амплитуды ψ и быстро осциллирующей функции координаты часов. Если в качестве часов использовать жесткий ротор, то координатой q_c будет угол поворота, вместо массы надо подставить момент инерции, а скорость движения часов $\sqrt{2E/M}$ станет угловой частотой вращения ω .

2. Продольное движение как часы

Наглядным примером замены времени на координату «часов» является параксиальное движение нерелятивистской частицы с большой энергией вдоль оси z [2]. Гамильтониан имеет вид

$$H_{tot} = \frac{p_x^2 + p_y^2}{2m} + U(x, y, z) + \frac{p_z^2}{2m} = H(p_x, p_y, x, y, z) + \frac{p_z^2}{2m}. \quad (10)$$

При этом вместо (3) имеем

$$\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} = (H - E)\Psi, \quad (11)$$

а замена (4) при достаточно большом продольном импульсе $\sqrt{2mE}$ дает вместо (8)

$$i\hbar \sqrt{\frac{2E}{m}} \frac{\partial}{\partial z} \psi = H\psi, \quad (12)$$

что отличается от формулы (45.8) из [2] только тем, что в H входит не только потенциальная, но и кинетическая энергия поперечных степеней свободы.

Такая неявная замена времени на квазиклассическое значение продольной координаты всегда делается при описании дифракции электрона на щелях (включая модификации, например, опыт Ааронова – Бома) и опыта Штерна – Герлаха [2; 5–7]. Это естественно, так как экраны и отклоняющие магниты неподвижны, а направление движения частиц и проекция их импульса на продольную координату считаются заданными.

В теории дифракции уравнение типа (12) называется параболическим уравнением [8]. Оно выводится из трехмерного уравнения Гельмгольца для параксиального распространения коротковолнового излучения. Одним из способов его вывода является замена функции Грина на уравнения Гельмгольца (поля точечного источника) $\exp\left(ik\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}\right)/\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$ на его приближение $\exp\left[ikz + ik(x^2 + y^2)/(2z)\right]/z$ при $\sqrt{x^2 + y^2} \ll z$, т. е. использование приближения дифракции Френеля.

Заметим, что, преобразуя стационарное УШ (1), мы рассмотрели стационарную задачу рассеяния, когда заданы специфические граничные условия на удаленной замкнутой поверхности. При этом движение системы считалось параксиальным относительно координаты, выбранной в качестве часов, а «направление времени» задается выбором знака импульса степени свободы с высокой энергией, используемой в качестве часов.

3. Более общая одномерная квазиклассическая система

Приведенный выше вывод легко обобщить. Считая в уравнении (1) гамильтониан исходной системы H малым возмущением, можно записать квазиклассическое решение невозмущенного уравнения в виде

$$\left[p_0(q_c)\right]^{-1/2} \exp\left[i\int_0^{q_c} p_0(q) dq/\hbar\right],$$

где $H_c(p_0, q_c) = E$, и, сделав замену

$$\Psi = \frac{\psi(\mathbf{q}, q_c)}{\sqrt{p_0(q_c)}} \exp\frac{i\int_0^{q_c} p_0(q) dq}{\hbar}, \quad (13)$$

получить для

$$H_c = \sum_{n=0}^{\infty} h_n(q_c) (-i\hbar)^{2n} \frac{\partial^{2n}}{\partial q_c^{2n}} \quad (14)$$

$$H_c \Psi \approx \left\{ E - \frac{i\hbar}{2} \frac{\partial p_0(q_c)}{\partial q_c} p_0 \frac{\partial}{\partial p_c} \left[\frac{1}{p_c} \frac{\partial H(p_c, q_c)}{\partial p_c} \right] \right\} \frac{\psi}{\sqrt{p_0(q_c)}} \exp\frac{i\int_0^{q_c} p_0(q) dq}{\hbar} - \frac{i\hbar}{\sqrt{p_0(q_c)}} \exp\frac{i\int_0^{q_c} p_0(q) dq}{\hbar} \frac{\partial H(p_c, q_c)}{\partial p_c} \frac{\partial \psi}{\partial q_c} \quad (15)$$

и

$$\begin{aligned}
H\psi &= \sqrt{p_0(q_c)} \exp\left[-i\int_0^{q_c} p_0(q) dq\right] (E - H_c) \exp\left[i\int_0^{q_c} p_0(q) dq\right] \frac{\psi}{\sqrt{p_0(q_c)}} \approx \\
&\approx i\hbar \left. \frac{\partial H(p_c, q_c)}{\partial p_c} \right|_{p_c=p_0(q_c)} \frac{\partial \psi}{\partial q_c} + \frac{i\hbar}{2} \frac{\partial p_0(q_c)}{\partial q_c} p_0 \frac{\partial}{\partial p_c} \left[\frac{1}{p_c} \frac{\partial H_c(p_c, q_c)}{\partial p_c} \right] \psi.
\end{aligned} \quad (16)$$

Если скорость часов меняется достаточно медленно, то, пренебрегая вторым членом в правой части (16), получим

$$H\psi \approx i\hbar \left. \frac{\partial H_c(p_c, q_c)}{\partial p_c} \right|_{p_c=p_0(q_c)} \frac{\partial \psi}{\partial q_c}. \quad (17)$$

Заметим, что для квадратичного по импульсу гамильтониана часов $H_c = p_c^2/(2M) + U(q_c)$ второй член в правой части (16) равен нулю и

$$H\psi \approx i\hbar \sqrt{2 \frac{E - U(q_c)}{M}} \frac{\partial \psi}{\partial q_c} = i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial \tau}, \quad (18)$$

т. е. часы идут неравномерно, но для удобства можно ввести специальную переменную

$$\tau = \sqrt{\frac{M}{2}} \int \frac{dq_c}{\sqrt{E - U(q_c)}}. \quad (19)$$

4. Гармонический осциллятор

Для часов в виде гармонического осциллятора можно записать их гамильтониан $H_c = p_c^2/(2M) + M\omega^2 q_c^2/2$ в представлении когерентных состояний (см., например, [9]).

Вводя повышающий

$$a^+ = \frac{q_c \sqrt{M\omega} - ip_c / \sqrt{M\omega}}{\sqrt{2\hbar}} \quad (20)$$

и понижающий

$$a = \frac{q_c \sqrt{M\omega} + ip_c / \sqrt{M\omega}}{\sqrt{2\hbar}} \quad (21)$$

операторы, получим $[a, a^+] = 1$ и

$$H_c = \frac{\hbar\omega}{2} (a^+ a + a a^+) = \hbar\omega \left(a^+ a + \frac{1}{2} \right). \quad (22)$$

Пусть α – собственное значение понижающего оператора a . Тогда в представлении когерентных состояний (α -представлении)

$$a^+ = -\frac{\partial}{\partial \alpha}, \quad (23)$$

а

$$H_c = -\hbar\omega \left(\alpha \frac{\partial}{\partial \alpha} + \frac{1}{2} \right). \quad (24)$$

С учетом (24) вместо (3) получим

$$\hbar\omega \frac{\partial}{\partial \ln \alpha} \Psi = \left(H - E - \frac{\hbar\omega}{2} \right) \Psi, \quad (25)$$

и подстановка

$$\Psi = \psi(\mathbf{q}, q_c) \alpha^{-E/(\hbar\omega) - 1/2} \quad (26)$$

дает

$$\hbar\omega \frac{\partial}{\partial \ln \alpha} \psi = H\psi. \quad (27)$$

При выводе (27) предполагалось, что H не зависит от q_c . Учитывая, что в представлении Гейзенберга скорость изменения оператора a для гармонического осциллятора равна

$$\dot{a} = \frac{i}{\hbar} [H_c, a] = -i\omega a, \quad (28)$$

можно ввести переменную $\tau = i \ln \alpha / \omega$. Тогда (27) принимает стандартный вид

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial \tau} = H\psi. \quad (29)$$

Уравнение (29) является точным. При этом переменная τ , описывающая состояние часов, является комплексной.

5. Смешанные состояния

При использовании проекционных операторов или, в более общем случае, матриц плотности R стационарное УШ сводится к условию коммутации

$$R(H + H_c) = (H + H_c)R, \quad (30)$$

или

$$[H, R] = -[H_c, R] \quad (31)$$

Правую часть (31) можно записать в координатном представлении [2]:

$$[H, R] = - \left\{ H_c \left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial q_c}, q_c \right) - H_c^* \left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial q'_c}, q'_c \right) \right\} R(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c). \quad (32)$$

Взяв для простоты гамильтониан часов (2) и сделав аналогичную (4) замену, выделяющую быстро осциллирующий множитель,

$$R(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c) = \exp \frac{i\sqrt{2ME}(q_c - q'_c)}{\hbar} R_s(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c), \quad (33)$$

получим

$$\begin{aligned} & [H, R_s(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c)] = \\ & = \exp \frac{i\sqrt{2ME}(q'_c - q_c)}{\hbar} \frac{\hbar^2}{2M} \left(\frac{\partial^2}{\partial q_c^2} - \frac{\partial^2}{\partial q'_c{}^2} \right) \left\{ \exp \frac{i\sqrt{2ME}(q_c - q'_c)}{\hbar} R_s(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c) \right\} \approx . \quad (34) \\ & i\hbar \sqrt{\frac{2E}{M}} \left\{ \frac{\partial}{\partial q_c} R_s(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c) + \frac{\partial}{\partial q'_c} R_s(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c) \right\} \end{aligned}$$

При $q_c = q'_c$, т. е. для диагональных по q_c элементов матрицы плотности R из (34) получаем обобщение нестационарного УШ (8) на случай смешанных состояний:

$$i\hbar \sqrt{\frac{2E}{M}} \frac{\partial}{\partial q_c} \rho(\mathbf{q}, \mathbf{q}', q_c) = [H, \rho(\mathbf{q}, \mathbf{q}', q_c)], \quad (35)$$

где $\rho(\mathbf{q}, \mathbf{q}', q_c) = R_s(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q_c)$.

6. Интерпретация полученных уравнений

В соответствии со стандартной интерпретацией волновой функции и статистического оператора, среднее значение величины, представляемой функцией $\varphi(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c)$, дается формулой (2.1) из [2]:

$$\langle \varphi \rangle = \int \varphi(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c) R(\mathbf{q}, q_c, \mathbf{q}', q'_c) d\mathbf{q} dq_c d\mathbf{q}' dq'_c. \quad (36)$$

Например, при $\varphi = \delta(\mathbf{q} - \mathbf{q}_0) \delta(q_c - q_{c0}) \delta(\mathbf{q}' - \mathbf{q}_0) \delta(q'_c - q_{c0})$ (36) дает вероятность нахождения системы в точке \mathbf{q}_0 при показаниях часов q_{c0} :

$$\langle \varphi \rangle = R(\mathbf{q}_0, q_{c0}, \mathbf{q}_0, q_{c0}) = \rho(\mathbf{q}_0, \mathbf{q}_0, q_{c0}). \quad (37)$$

Для получения среднего значения оператора $f(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ при показаниях часов q_c следует использовать

$$\varphi = \delta(\mathbf{q} - \mathbf{q}') \delta(q_c - q_{c0}) \delta(q'_c - q_{c0}) f\left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial \mathbf{q}}, \mathbf{q}\right). \quad (38)$$

Тогда

$$\begin{aligned} \langle \varphi \rangle & = \int \delta(\mathbf{q} - \mathbf{q}') f\left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial \mathbf{q}}, \mathbf{q}\right) R(\mathbf{q}, q_{c0}, \mathbf{q}', q_{c0}) d\mathbf{q} dq' = \\ & = \int \delta(\mathbf{q} - \mathbf{q}') f\left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial \mathbf{q}}, \mathbf{q}\right) \rho(\mathbf{q}, \mathbf{q}', q_{c0}) d\mathbf{q} dq' = \text{Sp}(f\rho). \end{aligned} \quad (39)$$

Заключение

Таким образом, время вводится в стационарное уравнение Шрёдингера через показания квазиклассических часов. Это, возможно, указывает на квазиклассический характер понятия времени и, в частности, на квазиклассический характер нестационарного УШ. С точки зрения

стандартной квантовой механики, последнее утверждение вполне естественно, так как время не является квантовомеханической наблюдаемой.

Можно сказать, что волновая функция (4) описывает «относительное состояние» [10] подсистемы с координатами \mathbf{q} при измеренном значении показаний часов q_c . При этом из-за квазиклассичности часов измерения дают результат с малой неопределенностью и заметного «ветвления миров» не происходит.

Технически приведенный вывод нестационарного УШ практически повторяет, как уже отмечалось в п. 3, вывод параболического уравнения теории дифракции из уравнения Гельмгольца. Эта аналогия поясняет его область применимости.

Список литературы

1. **Schrödinger E.** Quantisierung als eigenwertproblem // *Annalen der physik*. 1926. No. 79. P. 361–376.
2. **Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.** Квантовая механика. М.: Наука, 1974.
3. **Pauli W.** Über das Wasserstoffspektrum vom Standpunkt der neuen Quantenmechanik // *Zeitschrift für Physik*. 1926. No. 36. P. 336–363.
4. **Dirac P. A. M.** The fundamental equations of quantum mechanics // *Proc. of the Royal Society of London*. 1926. No. A 109. Pp. 642–653.
5. **Бом Д.** Квантовая теория. М.: Наука, 1965.
6. **Peres A.** *Quantum theory: Concepts and Methods*. New York, Boston, Dordrecht, London, Moscow: Kluwer Academic Publishers, 2002.
7. **Фейнман Р., Лейтон Р., Сэндс М.** Фейнмановские лекции по физике. М.: Мир, 1966.
8. **Вайнштейн Л. А.** Электромагнитные волны. М.: Радио и связь, 1988.
9. **Глаубер Р.** Оптическая когерентность и статистика фотонов // *Квантовая оптика и квантовая радиофизика* / Под ред. О. В. Богданкевича и О. Н. Крохина. М.: Мир, 1966. С. 91.
10. **Everett H. III.** «Relative State» Formulation of Quantum Mechanics // *Rev. Mod. Phys.* 1957. No. 29, iss. 3. P. 454–462.

References

1. **Schrödinger E.** Quantisierung als eigenwertproblem. *Annalen der physik*, 1926, no. 79, pp. 361–376.
2. **Landau L. D., Lifshitz E. M.** *Quantum mechanics*. Oxford, Pergamon Press, 1991.
3. **Pauli W.** Über das Wasserstoffspektrum vom Standpunkt der neuen Quantenmechanik. *Zeitschrift für Physik*, 1926, no. 36, pp. 336–363.
4. **Dirac P. A. M.** The fundamental equations of quantum mechanics. *Proceedings of the Royal Society of London*, 1926, no. A 109, pp. 642–653.
5. **Bohm D.** *Quantum theory*. N.-Y., Prentice-Hall Inc., 1952.
6. **Peres A.** *Quantum theory: Concepts and Methods*. New York, Boston, Dordrecht, London, Moscow, Kluwer Academic Publishers, 2002.
7. **Feynman R. P., Leighton R. B., Sands M.** *The Feynman Lectures on Physics*. Reading, Mass.: Addison-Wesley, 1965.
8. **Vainshtein L. A.** *Electromagnetic waves*. Moscow, Radio and Communication, 1988.
9. **Glauber R.** In *Quantum optics and electronics* (Eds C. DeWitt, A. Blandin, C. Cohen-Tannoudji). New York, London, Paris, Gordon and Breach, Science Publishers, 1965.
10. **Everett H. III.** “Relative State” Formulation of Quantum Mechanics. *Rev. Mod. Phys.* 1957, no. 29, iss. 3, pp. 454–462.

Информация об авторе

Николай Александрович Винокуров, доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН

Information about the Author

Nikolay A. Vinokurov, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Corresponding Member of RAS

*Статья поступила в редакцию 05.10.2023; одобрена после рецензирования 27.10.2023;
принята к публикации 27.10.2023*

*The article was submitted 05.10.2023; approved after reviewing 27.10.2023;
accepted for publication on 27.10.2023*

Научная статья

УДК 372.853, 536.11

DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-113-128

Использование систем компьютерной математики для решения некоторых задач термодинамики и статистической физики

Петр Васильевич Пипич

Высший колледж информатики Новосибирского государственного университета
Новосибирск, Россия
pipich.petr@mail.ru

Аннотация

С помощью математического пакета MathCAD получены решения задач с использованием уравнения теплового баланса, в которых теплоемкость рассчитывалась по теории Дебая, а также применялась сплайн-интерполяция экспериментальных данных по теплоемкости из справочника. Вычислена степень ионизации гелия при заданной температуре. Рассмотрен пример влияния примеси лития на степень ионизации водорода. Рассчитаны энергия и давление неона в области многократной ионизации. Построены изотермы идеального ферми-газа. Построен график функции распределения Ферми – Дирака для различных температур. Вычислена концентрация электронов и позитронов при температурах соответствующих энергии покоя электронов. Приведенные примеры можно использовать в учебном процессе.

Ключевые слова

системы компьютерной математики, уравнение теплового баланса, теория Дебая, сплайн-интерполяция, ионизация газов, идеальный ферми-газ, электрон-позитронная плазма

Для цитирования

Пипич П. В. Использование систем компьютерной математики для решения некоторых задач термодинамики и статистической физики // Сибирский физический журнал. 2023. Т. 18, № 3. С. 113–128. DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-113-128

The Use of Computer Mathematics Systems for Solving Some Problems of Thermodynamics and Statistical Physics

Piotr V. Pipich

Higher College of Computer Science Novosibirsk State University
Novosibirsk, Russian Federation
pipich.petr@mail.ru

Annotation

With the help of the MathCAD mathematical package, solutions to problems using the heat balance equation were obtained, in which the heat capacity was calculated according to Debye theory, and spline interpolation of experimental data on heat capacity from the reference book was also used. The degree of helium ionization at a given temperature is calculated. An example of the influence of lithium impurity on the degree of hydrogen ionization is considered. The energy and pressure of neon in the region of multiple ionization are calculated. Isotherms of an ideal fermi gas are con-

© Пипич П. В., 2023

structed. A graph of the Fermi-Dirac distribution function for various temperatures is constructed. The concentration of electrons and positrons at temperatures corresponding to the rest energy of electrons is calculated. These examples can be used in the educational process.

Keywords

computer mathematics systems, heat balance equation, Debye theory, spline interpolation, ionization of gases, ideal fermi gas, electron-positron plasma.

For citation

Pipich P. V. The use of computer mathematics systems for solving some problems of thermodynamics and statistical physics. *Siberian Journal of Physics*, 2023, vol. 18, no. 3, pp. 113–128 (in Russ.). DOI 10.25205/2541-9447-2023-18-3-113-128

Введение

При изучении и преподавании физики преподаватели и студенты сталкиваются с тем, что существует ряд задач, простых с физической точки зрения, но относительно сложных в вычислительном отношении. Например: уравнение теплового баланса является простым, когда теплоемкость постоянна, но зависимость теплоемкости от температуры усложняет вычисления. Функция распределения Ферми – Дирака выглядит обманчиво просто до тех пор, пока не нужно определить значение химического потенциала, который выражается в неявном виде через значение интеграла, определяющего концентрацию электронов. Количество подобных примеров можно умножить. Применение специальных математических пакетов, которые оптимизированы для решения физических задач, решает проблему, не превращая семинары по физике в уроки программирования. Наиболее известными являются: Maple, Mathematica, MATLAB и MathCAD. Использование этих систем компьютерной математики позволяет органически встроить численные методы в изучение физики без нарушения программы изучения физики и обогатить содержание курса. Приведены задачи, которые нельзя решить «на бумаге», но при наличии соответствующего программного обеспечения не возникает сложностей с получением ответа. Эти примеры могут быть использованы преподавателями, ведущими семинарские занятия по физике. Наиболее низкий порог вхождения имеет MathCAD, который использован для решения задач, хотя по приведенным примерам легко воспроизвести эти решения, используя другие математические пакеты: более поздние версии MathCAD, Maple и Mathematica, имеющиеся в распоряжении преподавателя и студентов.

Теплоемкость, зависящая от температуры

Титановая и цинковая пластины, с заданными массами и начальными температурами приведены в соприкосновение. Найти равновесную температуру T_f , предварительно создав интерполяционные функции $cTi(t)$ и $cZn(t)$ с использованием табличных значений теплоемкости cTi и cZn для ряда температур, взятых из справочника [1].

Самый простой способ получить ответ на вопросы – использовать для расчетов непосредственно табличные данные. С формальной точки зрения таблицу можно назвать ступенчатой интерполяцией зависимости между температурой и теплоемкостью. Однако MathCAD дает возможность использовать более точные интерполяционные формулы. Необходимые функции $cTi(t)$ и $cZn(t)$ создаем, интерполируя с помощью функции *interp* экспериментальные данные, представленные таблицами значений T , cTi , cZn . В диапазоне температур $T = 0 \dots 400$ K используется кубическая интерполяция, а за его пределами значения молярной теплоемкости экстраполируются линейной функцией, на что указывает функция *lspline*.

$T_{\text{эксп}} :=$	$c_{\text{Ti}} :=$	$c_{\text{Zn}} :=$
0	0	0
20	0.33	1.76
40	2.47	8.06
80	10.88	16.87
150	19.54	22.70
250	24.04	24.84
400	26.61	26.40

Экспериментальные значения молярных теплоемкостей титана c_{Ti} и цинка c_{Zn} для температуры T .

$TTi := 20$

$TZn := 400$

Начальные температуры титана и цинка

$\mu Ti := 0.0479$

$\mu Zn := 0.06537$

Молярные массы титана и цинка

$mTi := 0.200$

$mZn := 0.300$

Массы титановой и цинковой пластины

$CTi(t) := \text{interp}(\text{lspline}(T, cTi), T, cTi, t)$

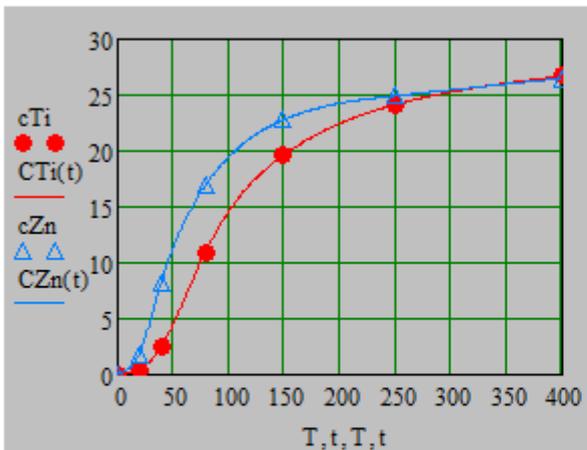
Создание интерполяционных функций $CTi(t)$, $CZn(t)$ по экспериментальным значениям теплоемкости cTi , cZn

$CZn(t) := \text{interp}(\text{lspline}(T, cZn), T, cZn, t)$

$t := 0..400$

-значения температуры необходимые для построения графика

Зависимость от температуры t интерполяционных функций $CTi(t)$ и $CZn(t)$ и массива экспериментальных значений cTi и cZn .



$dQ := 5$

-порция тепла которой обменивается титан и цинк на каждом шаге вычислений

$Tf := \text{while } TTi < TZn$

$$\left| \begin{array}{l} TTi \leftarrow TTi + \frac{\mu Ti \cdot dQ}{mTi \cdot CTi(TTi)} \\ TZn \leftarrow TZn - \frac{\mu Zn \cdot dQ}{mZn \cdot CZn(TZn)} \end{array} \right.$$

$Tf = 261.731$

-установившаяся температура

Вычисление равновесной температуры Tf с помощью root

$$\text{root} \left(\frac{mTi}{\mu Ti} \int_{TTi}^{Tf} CTi(T) dT - \frac{mZn}{\mu Zn} \int_{TZn}^{Tf} CZn(T) dT, Tf, TTi, TZn \right) = 261.721$$

Рис. 1. Вычисление равновесной температуры после приведения в контакт титановой и цинковой пластин

Fig. 1. Calculation of the equilibrium temperature after bringing titanium and zinc plates into contact

Если зависимость теплоемкости от температуры известна, т. е. известны функции $C_1(T)$ и $C_2(T)$ и заданы начальные температуры T_1 и T_2 тел массой m_1 и m_2 , то необходимо решить

уравнение теплового баланса для нахождения конечной температуры T_f . Уравнение теплового баланса является выражением закона сохранения энергии:

$$m_1 \cdot \int_{T_1}^{T_f} C_1(T) dT = m_2 \cdot \int_{T_f}^{T_2} C_2(T) dT.$$

Решение задачи получено двумя способами: 1) программным, в котором пластины обмениваются «квантами тепла» dQ до тех пор, пока температуры пластин не выравняются; 2) путем решения уравнения теплового баланса с неизвестной температурой T_f на верхнем и нижнем пределах интегрирования. Решение уравнения осуществляется с помощью функции **root**. Функция **root** работает следующим образом: для решения уравнения $f(x) = 0$ корень которого находится на отрезке $[a, b]$ записываем через запятую в качестве аргументов **root** в скобках правую часть уравнения $f(x)$, обозначение переменной x и границы отрезка a и b :

$$\text{root}(f(x), x, a, b) = .$$

Полное решение задачи представлено на рис 1.

Вычисления с помощью теории теплоемкости Дебая

Найти конечную температуру T_f после соприкосновения алюминиевой и медной пластин, начальные температуры которых $T_1 = 100 \text{ K}$ и $T_2 = 400 \text{ K}$.

Теория теплоемкости Дебая для алюминия и меди очень хорошо согласуется с опытом. Но расчеты с использованием интерполяционной формулы Дебая требуют применения вычислительной техники, а именно: необходимо решить уравнение теплового баланса с теплоемкостью, выражающейся формулой Дебая:

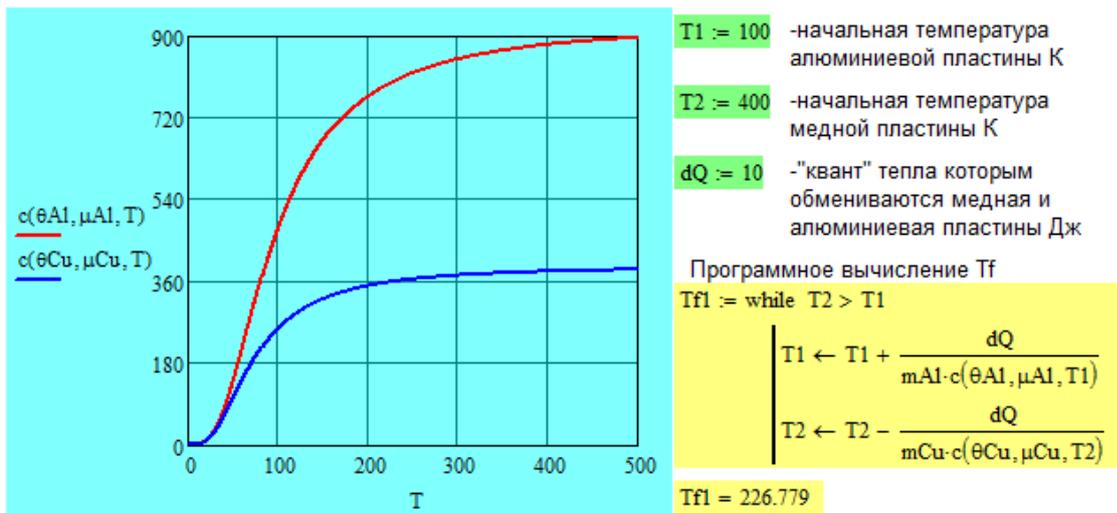
$$m_1 \cdot \int_{T_1}^{T_f} C_1(T) dT = m_2 \cdot \int_{T_f}^{T_2} C_2(T) dT, \quad C_{1,2}(T) = \frac{9 \cdot R}{\mu_{1,2}} \left(\frac{T}{\theta_{1,2}} \right)^3 \int_0^{\frac{\theta}{T_{1,2}}} \frac{x^4 \cdot e^x}{(e^x - 1)^2} dx.$$

На рис. 2 представлено решение T_f уравнения теплового баланса программным методом и с использованием решения уравнения, содержащего неизвестную на верхнем и нижнем пределах интегрирования T_f с помощью функции **root**.

Следующий пример иллюстрирует решение системы нелинейных уравнений. В данном случае для решения системы необходимо записать уравнения в блоке *Given – Find*, предварительно указав ожидаемые предположительные значения корней (*guess values*). В ряде случаев подбор *guess values* требует значительных усилий, и поэтому легкость решения систем уравнений с помощью компьютера часто оказывается иллюзорной.

$\mu_{Al} := 0.027$ $\mu_{Cu} := 0.06355$ -молярная масса алюминия и меди Дж/моль
 $\theta_{Al} := 396$ $\theta_{Cu} := 309$ -характеристическая температура алюминия и меди К
 $m_{Al} := 3$ $m_{Cu} := 4$ -масса алюминиевой и медной пластин кг
 $R := 8.31$ -универсальная газовая постоянная Дж/(К моль)

$c_{\text{Al}}(\theta, \mu, T) := \frac{9 \cdot R}{\mu} \cdot \left(\frac{T}{\theta}\right)^3 \cdot \int_0^{\frac{T}{\theta}} \frac{x^4 \cdot e^{-x}}{(e^x - 1)^2} dx$ -удельная теплоемкость по теории Дебая
 $T := 0..500$ -диапазон температур для построения графиков зависимости молярной теплоемкости от температуры



Вычисление равновесной температуры Tf с помощью функции root

$$Tf2 := \text{root} \left(m_{Al} \cdot \int_{T1}^{Tf2} c(\theta_{Al}, \mu_{Al}, T) dT - m_{Cu} \cdot \int_{Tf2}^{T2} c(\theta_{Cu}, \mu_{Cu}, T) dT, Tf2, T1, T2 \right) \quad Tf2 = 226.781$$

Рис. 2. Вычисление установившейся температуры при контакте алюминиевой и медной пластин
 Fig. 2. Calculation of the steady-state temperature at the contact of aluminum and copper plates

Ионизация гелия

Вычислить концентрации атомов и ионов гелия при температуре $T = 5$ эВ и общей концентрации атомов и ионов гелия $N = 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

Для вычисления степени ионизации газа используется формула Саха:

$$\frac{n \cdot n_{i+1}}{n_i} = \frac{g_e \cdot g_{i+1}}{g_i} \cdot \left(\frac{2 \cdot \pi \cdot m \cdot k \cdot T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot e^{\frac{-I_i}{k \cdot T}}$$

Если температура выражается в электрон-вольтах, то формула Саха приобретает вид:

$$\frac{n \cdot n_{i+1}}{n_i} = \frac{g_e \cdot g_{i+1}}{g_i} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{\frac{-I_i}{k \cdot T}}$$

Индекс i обозначает кратность иона, $i = 0$ относится к атому, I_i – потенциал ионизации i -го иона. Поскольку гелий может находиться в виде атомов и однократных, и двукратных ионов, то для вычисления степени ионизации необходимо использовать формулу Саха два раза, а также написать выражение для концентрации электронов и суммарной концентрации атомов и ионов гелия. В результате получится система четырех уравнений, показанная на рис. 3.

$I_1 := 24.48$ -потенциал ионизации атома гелия	$T := 5$ -температура гелия в эВ
$I_2 := 54.16$ -потенциал ионизации иона гелия	$g_0 := 1$ -статистический вес атома He I
$N := 10^{17}$ -общая концентрация атомов и ионов гелия	$g_1 := 2$ -статистический вес иона He II
$n_0 := 10^{12}$ -предположительная концентрация He I	$g_2 := 1$ -статистический вес иона He III
$n_1 := 10^{16}$ -предположительная концентрация He II	
$n_2 := 10^{17}$ -предположительная концентрация He III	
$n := 2 \cdot N$ -предположительная концентрация электронов	

Given

$$\frac{n \cdot n_1}{n_0} = \frac{2 \cdot g_1}{g_0} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{I_1}{T}} \quad \frac{n \cdot n_2}{n_1} = \frac{2 \cdot g_2}{g_1} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{I_2}{T}} \quad n_0 + n_1 + n_2 = N \quad n = n_1 + 2 \cdot n_2$$

$$\text{Find}(n_0, n_1, n_2, n) = \begin{pmatrix} 3.786 \times 10^{12} \\ 2.124 \times 10^{16} \\ 7.875 \times 10^{16} \\ 1.787 \times 10^{17} \end{pmatrix} \begin{array}{l} \text{- концентрация атомов He I} \\ \text{- концентрация однозарядных ионов He II} \\ \text{- концентрация двухзарядных ионов He III} \\ \text{- концентрация электронов} \end{array}$$

Рис. 3. Вычисление концентрации атомов и ионов гелия с помощью формулы Саха
Fig. 3. Calculation of the concentration of helium atoms and ions using the Saha formula

Влияние примесей на степень ионизации водорода

Рассмотреть влияние 10 % примеси лития на степень ионизации водорода при температуре 0,35 эВ.

Для нахождения концентрации водорода и лития необходимо решить систему двух уравнений Саха – Больцмана:

$$\frac{n_1 \cdot (n_1 + n_2)}{N_1 - n_1} = \frac{g_1 i \cdot g_e}{g_1} \cdot \left(\frac{2 \cdot \pi \cdot m \cdot k \cdot T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot e^{\frac{-I_1}{k \cdot T}},$$

$$\frac{n_2 \cdot (n_1 + n_2)}{N_2 - n_2} = \frac{g_2 i \cdot g_e}{g_2} \cdot \left(\frac{2 \cdot \pi \cdot m \cdot k \cdot T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot e^{\frac{-I_2}{k \cdot T}},$$

где m – масса электрона, k – постоянная Больцмана, h – постоянная Планка, остальные обозначения разъяснены на рис. 4. Система уравнений была несколько изменена: комбинация постоянных заменена численным значением, потенциал ионизации и температура выражены в электрон-вольтах.

$U1 := 13.6$	-потенциал ионизации атома H	$g1 := 2$	-статистический вес атома H I
$U2 := 5.39$	-потенциал ионизации атома Li	$g1i := 1$	-статистический вес иона H II
$N1 := 2 \cdot 10^{16}$	-общая концентрация атомов и ионов H	$g2 := 2$	-статистический вес атома Li I
$N2 := 2 \cdot 10^{15}$	-общая концентрация атомов и ионов Li	$g2i := 1$	-статистический вес иона Li II
$T := 0.35$	-температура смеси H, Li в эВ	$ge := 2$	-статистический вес электрона

$$f1(T) := \frac{g1i \cdot ge}{g1} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{U1}{T}}$$

$$n11(T) := \frac{-f1(T)}{2} + \sqrt{\left(\frac{f1(T)}{2}\right)^2 + f1(T) \cdot N1}$$

$$f2(T) := \frac{g2i \cdot ge}{g2} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{U2}{T}}$$

$$n22(T) := \frac{-f2(T)}{2} + \sqrt{\left(\frac{f2(T)}{2}\right)^2 + f2(T) \cdot N2}$$

$$n11(0.35) = 1.286 \times 10^{10}$$

- концентрация ионов H II чистого водорода

$$n22(0.35) = 4.45 \times 10^{14}$$

- концентрация ионов Li II чистого лития

$$n1 := 2 \cdot 10^9$$

-предположительная концентрация ионов водорода H II

$$n2 := 2 \cdot 10^{14}$$

-предположительная концентрация ионов лития Li II

Given

$$\frac{n1 \cdot (n1 + n2)}{N1 - n1} = \frac{g1i \cdot ge}{g1} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{U1}{T}}$$

$$\frac{n2 \cdot (n1 + n2)}{N2 - n2} = \frac{g2i \cdot ge}{g2} \cdot 3 \cdot 10^{21} \cdot T^{\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{U2}{T}}$$

$$\text{Find}(n1, n2) = \begin{pmatrix} 3.719 \times 10^5 \\ 4.45 \times 10^{14} \end{pmatrix}$$

- концентрация ионов водорода H II

- концентрация ионов лития Li II

Рис. 4. Вычисление степени ионизации водорода при наличии 10 % примеси лития
Fig. 4. Calculation of the degree of hydrogen ionization in the presence of 10 % lithium impurity

Для решения системы нелинейных уравнений необходимо указать предполагаемые корни, что является трудной задачей. Для выяснения влияния примеси на степень ионизации водорода были предварительно вычислены концентрации ионов водорода и лития без примесей. Сравнивая решение системы со значением концентрации ионов в чистом водороде, можно сделать вывод, что 10 % примеси лития более чем на четыре порядка понижает степень ионизации водорода.

Приближенный метод расчета в области многократной ионизации

Вычислить степень ионизации неона при температуре $T = 23$ эВ. Найти внутреннюю энергию и давление.

В основе предлагаемого метода расчета положена идея [2] о замене формулы Саха:

$$\frac{n_e \cdot n(m+1)}{n(m)} = \frac{g(m+1)}{g(m)} \cdot 6 \cdot 10^{21} \cdot T^{1.5} \cdot e^{\frac{-I(m+1)}{T}},$$

где n_e – концентрация электронов дифференциальным уравнением. В тексте используются обозначения принятые в [2], а в скриншоте рис. 5 компьютерного решения применяются отличные от текста обозначения, которые оговорены. Будем считать концентрацию ионов $n(m)$ и потенциал ионизации $I(m)$ непрерывными функциями m . Ввиду непрерывности $n(m)$, используем формулу:

$$n(m+1) = n(m) + \frac{dn(m)}{dm}.$$

Кроме того, отношение статистических весов $g(m+1)/g(m)$ ионов будем считать равным единице. Дифференциальное уравнение, заменяющее формулу Саха, будет иметь вид:

$$\left(1 + \frac{dn(m)}{dm}\right) \cdot n_e = 6 \cdot 10^{21} \cdot T^{1.5} \cdot e^{\frac{-I(m+1)}{T}}.$$

Условие сохранения числа частиц N и числа зарядов n имеет вид:

$$\int n(m)dm = N, \quad \int m \cdot n(m)dm = n_e.$$

Среднее число ионов, равное среднему числу электронов, считается равным значению m , при котором функция распределения имеет максимум:

$$\bar{m} = \frac{\int m \cdot n(m)dm}{\int n(m)dm} = \frac{n_e}{N}.$$

С учетом того, что в точке максимума производная равна нулю, имеем:

$$\bar{m} = \frac{6 \cdot 10^{21} \cdot T^{1.5} \cdot e^{\frac{-I(\bar{m}+0.5)}{T}}}{N}.$$

Решая это уравнение, найдем $\bar{m}(T, n)$. Зная степень ионизации газа, а следовательно, и число частиц, можно определить с приемлемой точностью давления внутреннюю энергию:

$$p = n(1 + \bar{m}) \cdot k \cdot T, \quad \varepsilon = \frac{3}{2} N(1 + \bar{m}) \cdot k \cdot T + N \cdot Q(\bar{m}),$$

где $Q(\bar{m})$ – средняя энергия ионизации, $Q_m = I_1 + I_2 + \dots + I_m$. Для нахождения $I(m)$ и $Q(m)$ используем сплайн-интерполяцию.

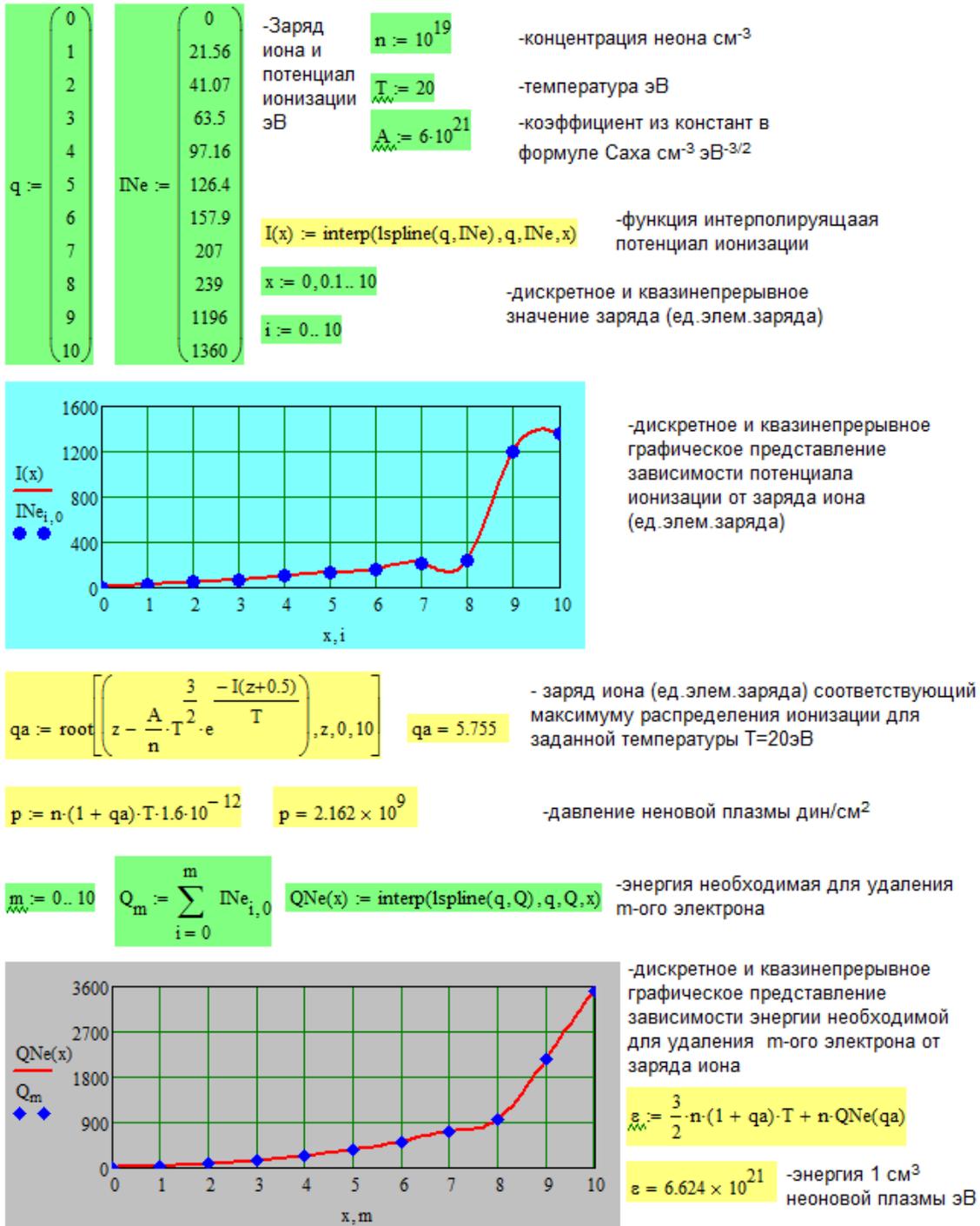


Рис. 5. Вычисление давления и энергии неона при многократной ионизации
 Fig. 5. Calculation of neon pressure and energy during multiple ionization

Изотермы электронного газа

Построить изотермы электронного газа. Количество электронов $N = 8.5 \cdot 10^{28}$, температуры $T1 = 2 \cdot 10^4$ К, $T2 = 5 \cdot 10^4$ К, $T3 = 9 \cdot 10^4$ К.

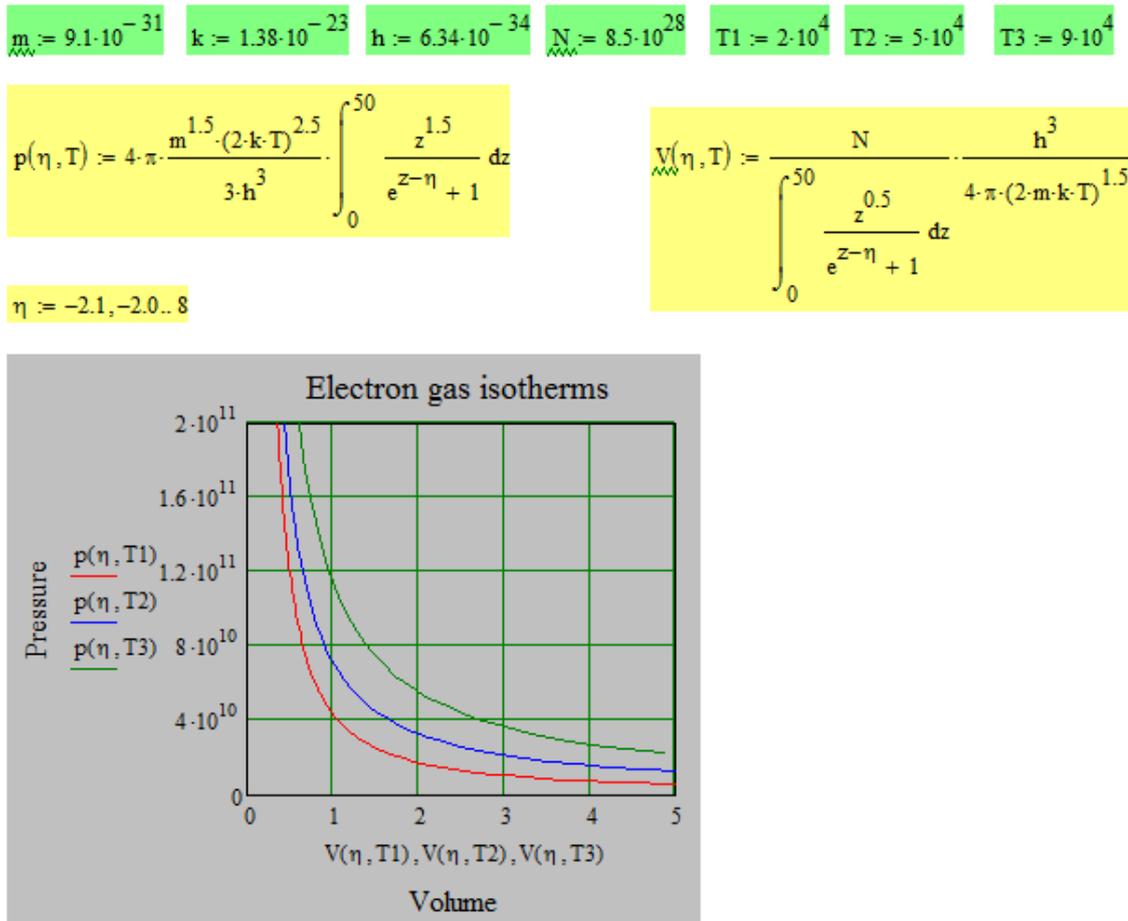


Рис. 6. Построение изотерм электронного газа при различных температурах
 Fig. 6. Construction of electron gas isotherms at different temperatures

Для построения изотерм используются формулы для концентрации N/V и давления электронного газа:

$$\frac{N}{V} = \frac{4 \cdot \pi \cdot (2 \cdot m \cdot k \cdot T)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \cdot \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{z} dz}{e^{z-\eta} + 1}, \quad p = \frac{4 \cdot \pi \cdot m^{\frac{3}{2}} \cdot (2 \cdot k \cdot T)^{\frac{5}{2}}}{3 \cdot h^3} \cdot \int_0^{\infty} \frac{z^{\frac{3}{2}} dz}{e^{z-\eta} + 1}.$$

Эти формулы в параметрическом виде ($\eta = \mu/(k \cdot T)$ – параметр) определяют связь между давлением p и объемом V . В формулах используются общепринятые обозначения: m – масса электрона; h – постоянная Планка; k – постоянная Больцмана; μ – химический потенциал.

Ввиду наличия в подынтегральном выражении экспоненты и, как следствие, быстрой сходимости, верхний предел интегрирования заменяется конечным числом 50.

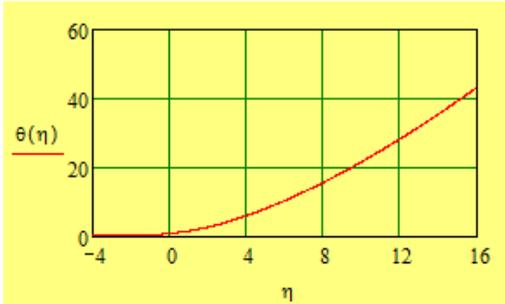
Вычисление функции Ферми – Дирака

1. Вычислить интеграл Ферми – Дирака $\theta(\eta)$ для значений параметра $-4 < \eta < 16$.
2. Вычислить значения параметра η , если значение интеграла $\theta(\eta) = 0,02, 3, 20, 45$.
3. Построить график значений распределения Ферми – Дирака для температур $T1 = 5000$ К, $T2 = 10\ 000$ К, $T3 = 25\ 000$ К, $T4 = 50\ 000$ К.

$m_e := 9.1 \cdot 10^{-31}$ -масса электрона кг
 $k := 1.38 \cdot 10^{-23}$ -постоянная Больцмана Дж/К
 $h := 6.63 \cdot 10^{-34}$ -постоянная Планка Дж·с
 $n := 3.818 \cdot 10^{28}$ -концентрация электронов м⁻³
 $\eta := -4, -3.9 \dots 16$ - значения параметра η для построения графика $\theta = \theta(\eta)$

$\theta(\eta) := \int_0^{100} \frac{\sqrt{x}}{e^{x-\eta} + 1} dx$ -интеграл Ферми-Дирака и график зависимости его значений от параметра $-4 < \eta < 16$. На верхнем пределе интегрирования вместо бесконечности стоит 100 ввиду быстрой сходимости интеграла.

$\text{root}(\theta(\eta) - 0.02, \eta, -4, 4) = -3.783$
 $\text{root}(\theta(\eta) - 3, \eta, -4, 4) = 2.365$
 $\text{root}(\theta(\eta) - 20, \eta, -4, 16) = 9.568$
 $\text{root}(\theta(\eta) - 45, \eta, -4, 50) = 16.528$ - примеры вычисления параметра η для заданного θ с помощью функции root



$g(T, n) := \frac{n \cdot h^3}{4 \cdot \pi \cdot (2 \cdot m \cdot k \cdot T)^{3/2}}$ -вспомогательная функция для вычисления η по заданным значениям температуры T и концентрации n.
 $T1 := 5000$ $T2 := 10000$
 $T3 := 25000$ $T4 := 50000$ -температуры для которых строится график $f(\epsilon, \eta)$

$\eta1 := \text{root}(g(T1, n) - \theta(\eta), \eta, -4, 26)$ $\eta2 := \text{root}(g(T2, n) - \theta(\eta), \eta, -4, 26)$
 $\eta3 := \text{root}(g(T3, n) - \theta(\eta), \eta, -4, 26)$ $\eta4 := \text{root}(g(T4, n) - \theta(\eta), \eta, -4, 26)$ -значения параметра η соответствующие температурам T1, T2, T3, T4 и концентрации n

$f(\epsilon, \eta) := \frac{1}{e^{\epsilon-\eta} + 1}$ -функция Ферми- Дирака $\epsilon_n := 0, 10^3 \dots 10^5$

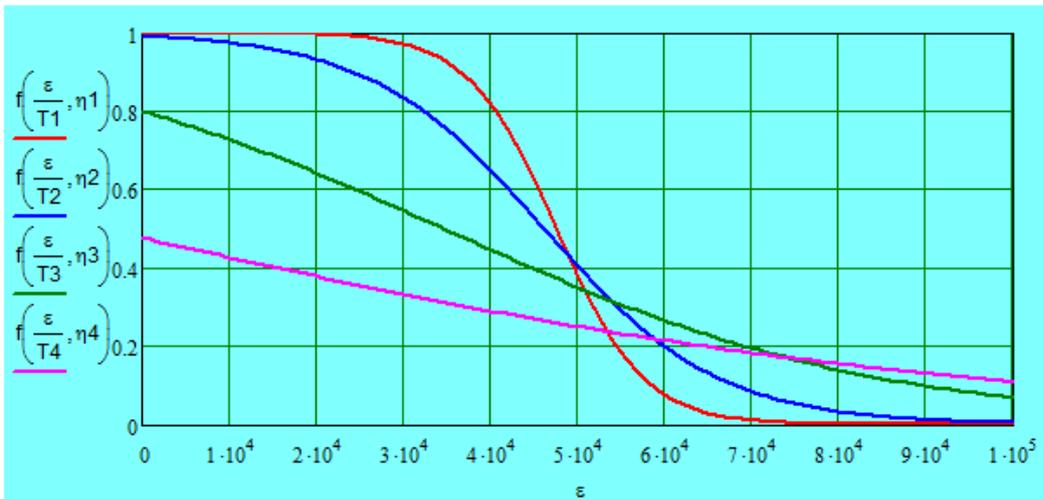


Рис. 7. Функция распределения Ферми – Дирака при различных значениях температуры
 Fig. 7. Fermi - Dirac distribution function at different temperature values

Интегралом Ферми – Дирака называется функция $\theta(\eta)$, выражающаяся через интеграл, зависящий от параметра η :

$$\theta(\eta) = \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x} dx}{e^{x-\eta} + 1} \approx \int_0^{100} \frac{\sqrt{x} dx}{e^{x-\eta} + 1}.$$

Ввиду наличия экспоненты в подынтегральном выражении и вследствие этого быстрой сходимости верхний предел можно заменить конечным числом, что важно для численного вы-

числения интеграла. В свое время этот интеграл был протабулирован, и таблицы значений приведены в ряде книг, например [3], поскольку он часто используется в расчетах термодинамических параметров газа фермионов. Однако на практике часто требуется по значению интеграла $\theta(\eta)$ найти значение параметра η . Это легко вычислить с помощью функции **root**, как показано на рис. 7.

Распределение Ферми – Дирака $f(E)$ имеет простой вид, но включает химический потенциал μ , который содержится в неявном виде в формуле определяющей концентрацию фермионов n :

$$f(E) = \frac{1}{e^{\frac{E-\mu}{kT}} + 1}, \quad n = 4 \cdot \pi \cdot \frac{(2 \cdot m)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \cdot \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{E} dE}{e^{\frac{E-\mu}{kT}} + 1} = 4 \cdot \pi \cdot \frac{(2 \cdot m \cdot k \cdot T)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \cdot \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x} dx}{e^{x-\eta} + 1},$$

Для нахождения параметра $\eta = \mu/(k \cdot T)$ необходимо решить уравнение:

$$n = 4 \cdot \pi \cdot \frac{(2 \cdot m \cdot k \cdot T)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \cdot \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x} dx}{e^{x-\eta} + 1}, \quad g(T, n) = \frac{n \cdot h^3}{4 \cdot \pi \cdot (2 \cdot m \cdot k \cdot T)^{\frac{3}{2}}} = \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x} dx}{e^{x-\eta} + 1}.$$

В дальнейшем относительно громоздкую правую часть будем обозначать как $g(T, n)$, а левую как $\theta(\eta)$, и уравнение для определения η будет иметь вид $g(T, n) - \theta(\eta) = 0$, где

$$\theta(\eta) = \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x} dx}{e^{x-\eta} + 1}, \quad g(T, n) = \frac{n \cdot h^3}{4 \cdot \pi \cdot (2 \cdot m \cdot k \cdot T)^{\frac{3}{2}}}.$$

Для построения графика зависимости распределения Ферми – Дирака введем новую переменную $\varepsilon = E/k$, т. е. выражаем энергию в единицах температуры в К. Обозначения и значения температуры подобраны так, чтобы можно было сравнить результаты с [3].

Имея в распоряжении способ вычисления химического потенциала, по известным формулам можно вычислить значения энергии и давления электронного газа.

Вычисление концентрации электронов в собственном полупроводнике

Найти концентрацию электронов в собственном полупроводнике с параболическими зонами при температуре $T = 600$ К, если известно, что ширина запрещенной зоны при таких температурах меняется по закону $E_g = (0,26 - 2,7 \cdot 10^{-4} \cdot T)$ эВ. Использовать значения эффективных масс $m_n = 0,002 m_0$ и $m_p = 0,02 m_0$, где m_0 – масса электрона.

Для иллюстрации возможностей решения уравнений с неизвестной под знаком интеграла была взята за основу задача № 9 из [4]. Требовалось найти концентрацию электронов с учетом вырождения. Если для решения задачи в [4] использовалась формула, аппроксимирующая интеграл Ферми – Дирака с индексом 1/2, то в данной работе условие нейтральности $n = p$, где n и p – концентрации электронов и дырок, рассматривалось как уравнение с неизвестной под знаком интеграла и решалось непосредственно численными методами с помощью средств пакета MathCAD:

$$N_c \cdot \Phi_{1/2}(\zeta^*) = N_v \cdot \Phi_{1/2}(\eta^*), \quad \text{где } \Phi_{1/2}(\zeta^*) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x} dx}{1 + \exp(x - \zeta^*)},$$

$$N_{c(v)} = \left(\frac{2\pi m_{n(p)} k T}{h^2} \right)^{3/2}.$$



Рис. 8. Вычисление концентрации электронов и дырок в собственном полупроводнике с параболическими зонами
 Fig. 8. Calculation of the concentration of electrons and holes in an intrinsic semiconductor with parabolic zones

При решении учитывалось, что

$$\eta^* = \frac{E_v - F}{k \cdot T} = -\zeta^* - \frac{E_g}{k \cdot T}, \quad \zeta^* = \frac{F - E_c}{k \cdot T},$$

где E_g – ширина запрещенной зоны; F – уровень Ферми; E_c – энергия дна зоны проводимости; E_v – энергия потолка валентной зоны. Для решения уравнения использовалась функция **root**, способ применения которой описан в предыдущих задачах, а подробности представлены на рис. 8. По существу сам процесс решения занимает две строки. При сравнении ответа в [4] и найденного значения концентрации n следует иметь в виду, что в [4] в ответе, по-видимому, опечатка.

Образование электронов и позитронов при $k \cdot T = m \cdot c^2$

Вычислить концентрацию электронов и позитронов при $k \cdot T = m \cdot c^2$ и построить график зависимости концентрации электронов и позитронов при $0,2 \cdot m \cdot c^2 < k \cdot T < 5 \cdot m \cdot c^2$.

При температурах, сравнимых с энергией покоя электронов $k \cdot T \approx m \cdot c^2$, столкновения частиц в веществе сопровождается образованием электрон-позитронных пар и с термодинамической точки зрения можно рассматривать реакции $e^+ + e^- = \gamma$ или $e^+ + e^- = \gamma + \gamma$, где γ – символ, обозначающий фотон; e^+ – обозначение позитрона; e^- – символ, обозначающий электрон. Химический потенциал фотонного газа μ равен 0, кроме того, концентрации электронов и позитронов равны, и поэтому имеет место равенство:

$$\mu^+ + \mu^- = 0, \quad \mu^+ = \mu^- = 0,$$

где μ^+ и μ^- – химические потенциалы позитронов и электронов. Электроны и позитроны подчиняются статистике Ферми – Дирака, поэтому их концентрация n выражается формулой:

$$n^+ = n^- = n = \frac{8 \cdot \pi}{h^3} \cdot \int_0^{\infty} \frac{p^2 dp}{e^{\frac{\sqrt{p^2 \cdot c^2 + m^2 \cdot c^4}}{k \cdot T}} + 1},$$

где h – постоянная Планка; k – постоянная Больцмана; T – температура в кельвинах; p – импульс; c – скорость света; m – масса электрона.

Удобно выразить температуру в единицах $m \cdot c^2$, т. е. использовать формулу $\theta = k \cdot T / m \cdot c^2$, а также $x = p / (m \cdot c)$. Тогда в новых обозначениях:

$$n^+ = n^- = n = 8 \cdot \pi \cdot \left(\frac{m \cdot c}{h}\right)^3 \int_0^{\infty} \frac{x^2 dx}{e^{\frac{\sqrt{1+x^2}}{\theta}} + 1}.$$

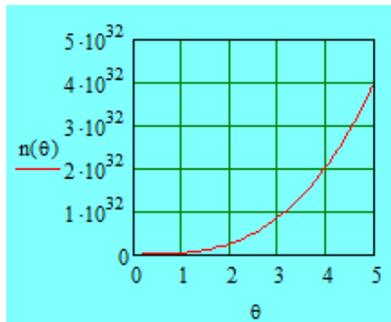
Интеграл быстро сходится ввиду наличия в подынтегральном выражении экспоненты, на рис. 8 показан график подынтегрального выражения и вычислены значения интеграла при значениях верхнего предела 10 и 100, если $\theta = 1$. Хотя значения интеграла отличаются лишь в третьем знаке после запятой, целесообразно взять верхний предел равным 100, поскольку при малых θ максимум подынтегрального выражения смещается вправо. Брать верхний предел слишком большим нецелесообразно, поскольку значение экспоненты превысит 10^{307} , что является критичным для Маткада и будет выдано сообщение об ошибке. Были вычислены концентрации электронов и позитронов в см^{-3} при значениях $\theta = 0,2, 1, 5$ и построен график зависимости концентрации от температуры. При $\theta > 0,1$ концентрация электронов превышает концентрацию электронов в веществе и выполняется равенство $n^+ = n^-$, на котором были основаны расчеты. При больших $\theta \gg 1$ можно выражение для энергии в показателе экспоненты заменить ультрарелятивистским пределом $\varepsilon = p \cdot c$ и выразить интеграл через ζ -функцию, как сделано в [5]. При $T \ll m \cdot c^2$ подынтегральное выражение быстро убывает с уменьшением температуры как $\exp(-m \cdot c^2 / (k \cdot T))$.

$m_e := 9.1 \cdot 10^{-28}$ -масса электрона г
 $c := 3 \cdot 10^{10}$ -скорость света см/с
 $h := 6.63 \cdot 10^{-27}$ -постоянная Планка эрг с

$$n(\theta) := 8 \cdot \pi \cdot \left(\frac{m \cdot c}{h} \right)^3 \int_0^{100} \frac{x^2}{e^{\frac{\theta}{\sqrt{1+x^2}}} + 1} dx$$

$n(0.2) = 1.859 \times 10^{27}$ $n(1) = 2.658 \times 10^{30}$

$n(5) = 3.925 \times 10^{32}$ $\theta := 0.2, 0.3..5$



Зависимость концентрации электронов и позитронов $n(\theta)$ (см⁻³) от температуры

График зависимости подынтегральной функции от x при различных $\theta=1,2,5$ позволяет оценить значения верхнего предела интегрирования.

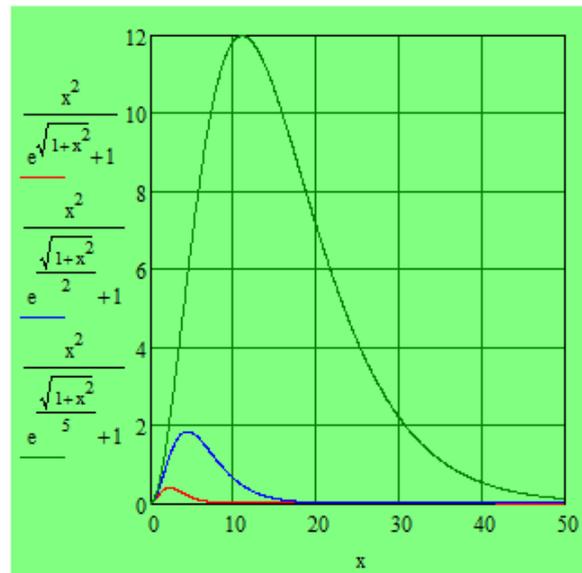


Иллюстрация влияния верхнего предела интегрирования на точность вычисления интеграла

$$\int_0^{50} \frac{x^2}{e^{\frac{\theta}{\sqrt{1+x^2}}} + 1} dx = 222.984$$

$$\int_0^{100} \frac{x^2}{e^{\frac{\theta}{\sqrt{1+x^2}}} + 1} dx = 223.675$$

Рис. 9. Вычисление концентрации электронов и позитронов при температурах, сравнимых с энергией покоя электронов

Fig. 9. Calculation of the concentration of electrons and positrons at temperatures comparable to the rest energy of electrons

Заключение

Средствами компьютерной математики можно решить ряд физических задач, вычисления в которых представляют самостоятельную проблему. С помощью MathCAD это делается компактно в максимально естественном виде. Следует подчеркнуть, что приведенные скриншоты представляют исчерпывающее решение. Кроме того, уравнения, содержащие неизвестную под знаком интеграла, встречаются во многих физических задачах. Например, в вычислениях с использованием функции распределения Ферми – Дирака в релятивистском случае, при изучении эффекта Штарка для ридберговских состояний атома водорода, в задачах, связанных с лазерным зондированием. Поэтому приведенный метод решения уравнения с неизвестной в подынтегральном выражении не ограничивается нахождением химического потенциала газа Ферми – Дирака, а имеет широкое поле применения.

Список литературы

1. Таблицы физических величин: Справочник / Под ред. акад. И. К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1008 с.
2. **Зельдович Я. Б., Райзер Ю. П.** Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. М.: Физматгиз, 1963. 632 с., с илл.
3. **Киттель Ч.** Статистическая термодинамика. М.: Наука, 1977. 336 с., с илл.
4. **Бонч-Бруевич В. Л., Звягин И. П., Карпенко И. В., Миронов А. Г.** Сборник задач по физике полупроводников. М.: Наука, 1987. 144 с.
5. **Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.** Статистическая физика. М.: Наука, 1976. Ч. 1. 584 с., с илл.

References

1. Tables of physical quantities. Guide. Ed. akad. I. K. Kikoin. M., Atomizdat, 1976, 1008 p.
2. **Zeldovich Ya. B. and Raiser Yu. P.** Physics of shock waves and high-temperature hydrodynamic phenomena. Moscow, Fizmatgiz, 1963, 632 p. with fig.
3. **Kittel Ch.** Statistical thermodynamics. Moscow, Nauka, 1977, 336 p. with fig.
4. **Bonch-Bruevich V. L. , Zvyagin I. P., Karpenko I. V., Mironov A. G.** Collection of problems in semiconductor physics. Moscow, Nauka, 1987, 144 p.
5. **Landau L. D., Lifshits E. M.** Statistical Physics. Moscow, Nauka, 1976, part 1, 584 p. with fig.

Сведения об авторе

Петр Васильевич Пипич, преподаватель

Information about the Author

Pyotr V. Pipich, Lecturer

*Статья поступила в редакцию 31.08.2023; одобрена после рецензирования 18.09.2023;
принята к публикации 26.10.2023*

*The article was submitted 31.08.2023; approved after reviewing 18.09.2023;
accepted for publication on 26.10.2023*

Информация для авторов

«Сибирский физический журнал» публикует обзорные, оригинальные и дискуссионные статьи, посвященные научным исследованиям и методике преподавания физики в различных разделах науки, соответствующих направлениям подготовки на кафедрах физического факультета НГУ. Журнал издается на русском языке, однако возможна публикация статей иностранных авторов на английском языке.

1. Очередность публикации статей определяется их готовностью к печати. Рукописи, оформленные без соблюдения правил, к рассмотрению не принимаются.

Вне очереди печатаются краткие сообщения (не более четырех журнальных страниц), требующие срочной публикации и содержащие принципиально новые результаты научных исследований, проводимых в рамках тематики журнала.

Рекламные материалы публикуются при наличии гарантии оплаты, устанавливаемой по соглашению сторон.

2. В журнале печатаются результаты, ранее не опубликованные и не предназначенные к одновременной публикации в других изданиях. Публикация не должна нарушить авторского права других лиц или организаций.

Направляя свою рукопись в редакцию, авторы автоматически передают учредителям и редколлегии права на издание данной статьи на русском или английском языке и на ее распространение в России и за рубежом. При этом за авторами сохраняются все права как собственников данной рукописи. В частности, согласно международным соглашениям о передаче авторских прав за авторами остается право копировать опубликованную статью или ее часть для их собственного использования и распространения внутри учреждений, сотрудниками которых они являются. Копии, сделанные с соблюдением этих условий, должны сохранять знак авторского права, который появился в оригинальной опубликованной работе. Кроме того, авторы имеют право повторно использовать весь этот материал целиком или частично в компиляциях своих собственных работ или в учебниках, авторами которых они являются. В этих случаях достаточно включить полную ссылку на первоначально опубликованную статью.

3. Направлять рукописи в редакцию авторам рекомендуется по электронной почте либо приносить в редакцию электронную версию (в форматах MS WORD – *.doc, или *.docx, или *.rtf) на диске или флэш-памяти. Такая отправка исходных материалов значительно ускоряет процесс рецензирования.

Авторам предлагается посылать свои сообщения в наиболее сжатой форме, совместимой с ясностью изложения, в совершенно обработанном и окончательном виде, предпочтительно без формул и выкладок промежуточного характера и громоздких математических выражений. Не следует повторять в подписях к рисункам пояснений, уже содержащихся в тексте рукописи, а также представлять одни и те же результаты и в виде таблиц, и в виде графиков.

Рекомендованный объем присылаемых материалов: обзорные статьи – до 25-ти страниц, оригинальные материалы – до 12-ти страниц, краткие сообщения – до 4-х страниц. В любом случае объем рукописи должен быть логически оправданным.

Не рекомендуется предоставление электронных копий рукописей в формате LATEX. По техническим условиям издательства в этом случае рукопись будет преобразована редакцией в формат MS WORD, что может привести к значительному увеличению времени обработки рукописи и искажениям авторского текста.

Сокращений слов, кроме стандартных, применять нельзя. Все страницы рукописи должны быть пронумерованы.

4. При отправке файлов по электронной почте просим придерживаться следующих правил:

- указывать в поле subject (тема) название, номер журнала и фамилию автора;
- использовать attach (присоединение);

- в случае больших объемов информации возможно использование общеизвестных архиваторов (ARJ, ZIP, RAR);
- в состав электронной версии рукописи должны входить:
- файл, содержащий текст рукописи со вставленными в него рисунками;
- отдельные файлы с рисунками высокого качества;
- файл со сведениями об авторах (полностью фамилия, имя, отчество, ученые степень и звание, место работы, служебный адрес и телефон, адрес электронной почты для оперативной связи);
- файл с переводом на английский язык следующей информации: ФИО авторов, аффилиация, адрес, название статьи, аннотация, ключевые слова, подрисуночные подписи, названия таблиц.

Авторы вставляют рисунки и таблицы в текст рукописи так, как считают нужным. Рукопись обязательно должна быть подписана автором, а при наличии нескольких авторов – всеми соавторами.

Редакция обращает внимание авторов на возможность и целесообразность использования цветного графического материала.

5. В начале рукописи должны быть указаны индекс УДК, название статьи, ФИО авторов (полностью), название и почтовый адрес учреждений, в которых выполнена работа, аннотация, содержащая основные результаты и выводы работы (в английском варианте не менее 1 000 знаков, русский вариант должен соответствовать английскому), ключевые слова, сведения о финансовой поддержке работы.

Например:

УДК 29.19.37; 47.03.08

Оценка конвективного массопереноса

Иван Иванович Иванов

Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича

Сибирского отделения Российской академии наук

Новосибирск, Россия

ivan@academ.org, <https://orcid.org/xxxx-xxxx-xxxx-xxxx>

Аннотация

Ключевые слова

Благодарности

Evaluation of Convective Mass Transfer

Ivan I. Ivanov

Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics

of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences

Novosibirsk, Russian Federation

ivan@academ.org, <https://orcid.org/xxxx-xxxx-xxxx-xxxx>

Abstract

Keywords

Acknowledgements

Основной текст статьи

Список литературы / References (в порядке цитирования)**Сведения об авторе / Information about the Author**

Иванов Иван Иванович, доктор физико-математических наук, профессор
Ivan I. Ivanov, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Professor
WoS Researcher ID
Scopus Author ID
SPIN

Подпись автора (авторов)

6. Параметры страницы: формат – А4; ориентация – книжная; поля (см): слева – 2,5; справа – 1; сверху – 2,5; снизу – 2,3; от края до нижнего колонтитула – 1,3.

7. Основной текст: стиль – «Обычный»: гарнитура (шрифт) Times New Roman (Сур), кегль (размер) 12 пунктов, абзацный отступ – 0,5 см, через 1,5 интервала, выравнивание – по ширине.

В тексте рукописи следует избегать аббревиатур, даже таких общепринятых, как ЭДС, ВТСП и т. п. Использование аббревиатур и простых химических формул в заголовках рукописей совершенно недопустимо. Следует писать: высокотемпературная сверхпроводимость, кремний, арсенид галлия и т. п., давая при необходимости соответствующую аббревиатуру или химическую формулу в тексте. Исключение могут составлять формулы сложных химических соединений. Каждое первое употребление аббревиатуры в тексте должно быть четко пояснено.

Не следует:

- производить табуляцию;
- разделять абзацы пустой строкой;
- использовать макросы, сохранять текст в виде шаблона и с установкой «только для чтения»;
- распределять текст по двум или более столбцам;
- расставлять принудительные переносы.

8. Таблицы должны иметь заголовки (на русском и английском языках). В таблицах обязательно указываются единицы измерения величин.

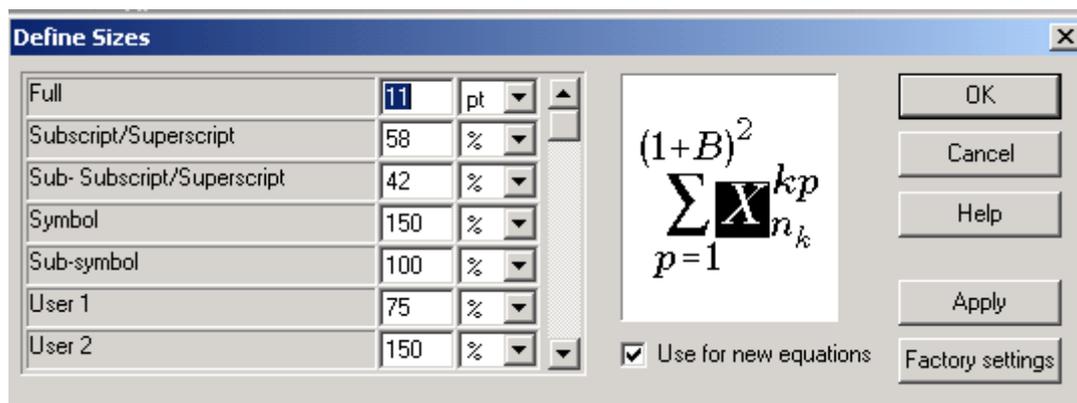
9. Число рисунков должно быть логически оправданным, качество – высоким. Файлы изображений должны находиться в том же каталоге, что и основной документ, и иметь имена, соответствующие номерам рисунков в рукописи (например, 09.tif или 22a.jpg).

10. Подписи к рисункам (на русском и английском языках) в электронной версии рукописи выполняются под рисунками, точка в конце не ставится. Если имеется несколько рисунков, объединенных одной подписью, они обозначаются русскими строчными буквами: а, б, в...

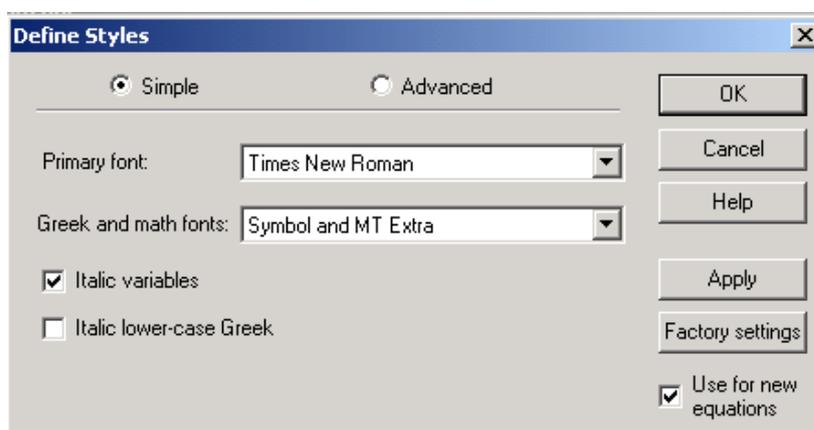
11. Формулы набираются в редакторе формул Microsoft Equation MathType в подбор к тексту или отдельной строкой по центру, **кегль 11 пт.**

Нумерация формул сквозная, в круглых скобках, прижатых к правому полю. Нумеровать следует только те формулы, на которые есть ссылки в тексте.

Настройки редактора формул



a



б

12. Библиографические ссылки. В тексте в квадратных скобках арабскими цифрами указывается порядковый номер научного труда в библиографическом списке, например: [2; 3], [4–6] и т. д. В конце рукописи помещается список литературы в порядке упоминания в рукописи. Ссылки на российские издания приводятся на русском языке и сопровождаются переводом на английский язык (в отдельной строке, но под тем же номером). Библиографическое описание публикации включает: фамилию и инициалы автора, полное название работы, а также издания, в котором опубликована (для статей), город, название издательства, год издания, том (для многотомных изданий), номер, выпуск (для периодических изданий), объем публикации (количество страниц – для монографии, первая и последняя страницы – для статьи).

Ссылки на интернет-источники, базы данных и т. п. ресурсы, не поддающиеся библиографическому описанию, оформляются в виде примечаний (сносок).

13. В конце рукописи авторы могут поместить список использованных обозначений и сокращений.

14. Возвращение рукописи на доработку не означает, что рукопись уже принята к печати. Доработанный вариант необходимо прислать в редакцию в электронном виде с соблюдением всех требований вместе с ее начальной версией, рецензией и ответом на замечания рецензента не позднее двух месяцев со дня его отсылки. В противном случае первоначальная дата поступления рукописи при публикации не указывается.

15. Решение редакционной коллегии о принятии рукописи к печати или ее отклонении сообщается авторам.

В случае приема рукописи к публикации авторы должны прислать или передать в редакцию два бумажных экземпляра рукописи. Материалы печатаются на принтере на одной стороне стандартного (формат А4) листа белой бумаги. При этом тексты рукописи в бумажной и электронной версиях должны быть идентичными.

16. К рукописи прилагаются письмо от учреждения, в котором выполнена работа, и экспертное заключение о возможности ее опубликования в открытой печати. Если коллектив авторов включает сотрудников различных учреждений, необходимо представить направления от всех учреждений.

Сообщения, основанные на работах, выполненных в учреждении (учреждениях), должны содержать точное название и адрес учреждения (учреждений), публикуемые в статье.

17. После подготовки рукописи к печати редакция отправляет авторам электронную версию статьи с просьбой срочно сообщить в редакцию электронной почтой о замеченных опечатках для внесения исправлений в печатный текст.

18. После выхода журнала статьи размещаются на сайте физического факультета НГУ, а также на сайте Научной электронной библиотеки (elibrary.ru).

Адрес редакции

Физический факультет, к. 140 главного корпуса НГУ
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090,
редакция «Сибирского физического журнала»

тел. +7 (383) 363 44 25
physics@vestnik.nsu.ru