

УДК 539.26, 519.6

МОДЕЛИРОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКЦИИ НА УГЛЕРОДНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ И ОПРЕДЕЛЕНИЕ ИХ ВОЗМОЖНОГО ТОПОЛОГИЧЕСКОГО СОСТАВА В ОСАЖДЁННЫХ ПЛЁНКАХ ИЗ ТОКАМАКА Т-10

В.С. Неверов, А.Б. Кукушкин, Н.Л. Марусов, И.Б. Семёнов (Институт физики токамаков РНЦ «Курчатовский институт», Москва, Россия), В.В. Волошинов, А.П. Афанасьев, А.С. Тарасов (Институт системного анализа РАН, Москва, Россия), А.А. Велигжанин, Я.В. Зубавичус, Н.Ю. Свечников, В.Г. Станкевич (НТК «Курчатовский центр синхротронного излучения и нанотехнологий» РНЦ «Курчатовский институт», Москва, Россия)

Проведено численное моделирование кривых рентгеновского рассеяния на случайных ансамблях углеродных наноструктур различной топологии (трубок, сфер, эллипсоидов и тороидов) в широком диапазоне их геометрических параметров. Диапазон значений модуля вектора рассеяния q охватывает вклад графеновой и близкой к ней («околографеновой») структуры одностенных углеродных наноструктур ($q \sim 30$ и 50 нм^{-1}) и вклад пространственных корреляций размером $\sim 1 \text{ нм}$ ($q \sim 10 \text{ нм}^{-1}$). Предложена и проверена модель, позволяющая приближенно учитывать вклады в кривые интенсивности рентгеновского рассеяния от графеновой структуры одностенных нанообъектов без точного расчёта расположения атомов в стенке. Сформулирована оптимизационная задача идентификации вероятностей принадлежности элементарного рассеивателя (атома углерода) к наноструктуре определённой топологии и размера. Такая задача решена на ограниченном классе указанных наноструктур для интерпретации результатов рентгеновского рассеяния на плёнках, осаждённых внутри вакуумной камеры токамака Т-10, проведённого на синхротронном источнике в РНЦ «Курчатовский институт» (длина волны $\lambda = 0,0464 \text{ нм}$). Определённый успех предложенной модели в аппроксимации наблюдаемой кривой, а именно её сильного широкого пика на $q \sim 10 \text{ нм}^{-1}$ и формы кривой интенсивности рассеяния в «графеновой» области ($q \sim 35\text{—}60 \text{ нм}^{-1}$), показывает, что необычный пик может быть обусловлен наноструктурами, состоящими из неплоских однослойных листов графена и наиболее вероятным кандидатом, ответственным за этот пик, оказываются тороиды (небольшие тороидальные углеродные нанотрубки). Указаны пути улучшения совпадения предлагаемой модели с экспериментом.

Ключевые слова: численное моделирование, углеродные наноструктуры, рентгеновская дифракция, пылевые осадки, токамак.

MODELLING OF X-RAY DIFFRACTION BY CARBON NANOSTRUCTURES AND DETERMINATION OF THEIR POSSIBLE TOPOLOGICAL CONTENTS IN THE DEPOSITED FILMS FROM TOKAMAK T-10. V.S. NEVEROV, A.B. KUKUSHKIN, N.L. MARUSOV, I.B. SEMENOV, V.V. VOLOSHINOV, A.P. AFANASIEV, A.S. TARASOV, A.A. VELIGZHANIN, Ya.V. ZUBAVICHUS, N.Yu. SVECHNIKOV, V.G. STANKEVICH. Numerical modeling of x-ray scattering by chaotic ensembles of carbon nanostructures of various topology (tubes, spheres, ellipsoids and toroids) over a broad range of their geometric sizes is carried out. The range of the values of scattering vector's modulus q covers the contribution of the graphene structuring, and a close one («near-graphene»), of single-walled carbon nanostructures ($q \sim 30$ and 50 nm^{-1}) and the contribution of space correlations of the size $\sim 1 \text{ nm}$ ($q \sim 10 \text{ nm}^{-1}$). A model is suggested and tested, which provides approximate description of the contribution to x-ray intensity curves from graphene structuring of single-walled carbon nanoobjects without precise calculation of the carbon atoms layout within the wall. An optimization problem of determination of the probability of an elementary scatterer (carbon atom) to belong to a nanostructure of definite topology and definite size is formulated. This problem is solved for a number of nanostructures mentioned above to interpret the results of x-ray intensity scattering by the films, deposited in the vacuum chamber of tokamak T-10, carried out at the Kurchatov Institute Synchrotron Radiation Source (wavelength $\lambda = 0.0464 \text{ nm}$). Some success of the proposed approach in fitting the observed curve, namely its strong wide peak at $q \sim 10 \text{ nm}^{-1}$ and the scattering curve profile in the «grapheme» region ($q \sim 35\text{—}60 \text{ nm}^{-1}$), suggests that unusual peak may be caused by the nanostructures composed of curved single-layer graphene sheets, the toroids (small toroidal carbon nanotubes) appear to be most probable candidates, responsible for this peak. The source of improving the agreement of the proposed model with the experiment is indicated.

Key words: numerical modeling, carbon nanostructures, x-ray diffraction, dust deposits, tokamak.

ВВЕДЕНИЕ

Создание новых наноматериалов ставит задачу контроля свойств материалов в нанометровом диапазоне размеров. Одним из наиболее эффективных инструментов, способных решать такие задачи, является рентгеновская дифрактометрия в субнанометровом диапазоне длин волн. Создание автоматизированных систем обработки результатов такой дифрактометрии с помощью современных вычислительных средств, включающих проведение параллельных и распределённых вычислений, оказывается неотъемлемой частью программ по созданию новых наноматериалов.

Настоящая работа является составной частью таких исследований. Основными целями этой работы являются разработка и численная реализация расчётно-теоретической модели для задачи диагностики

углеродных наноструктур, получаемых в условиях, приближенных к условиям возможного получения новых наноматериалов каркасного типа [1, 2]. Исключительно информативным и доступным материалом, который содержит следы процессов, необходимых для образования каркасного наноматериала из углеродных наноструктур трубчатого типа, являются плёнки, извлекаемые из установок для магнитного удержания плазмы и управляемого термоядерного синтеза, прежде всего установок типа токамак. Свидетельства образования каркасных структур из углеродных нанотрубчатых структур в токамаке получены путём просвечивающей и сканирующей электронной микроскопии плёнок и частиц из токамака Т-10 [3—5]. При этом были исследованы структурные элементы в диапазоне размеров от нескольких до сотен нанометров. Обширное исследование структурных особенностей этих же плёнок различными диагностиками в диапазоне существенно меньших размеров (субнанометровых) было проведено в [6—9]. Последним шагом, «заполняющим» ранее не исследованный диапазон вблизи одного нанометра, стала рентгеновская дифрактометрия плёнок, осаждённых внутри вакуумной камеры в токамаке Т-10, проведённая на синхротронном источнике в РНЦ «Курчатовский институт» (на длинах волн $\lambda = 0,1$ нм и $\lambda = 0,0464$ нм), а также с помощью стандартной рентгеновской трубки ($\lambda = 0,154$ нм) [10, 11], которая показала, что высокий широкий пик на малых углах в угловом распределении рассеянного сигнала не описывается известными структурными особенностями поликристаллов типичных примесей (включая графит) и наиболее известных наноблоков (прямых нанотрубок и фуллеренов). Большая ширина этого пика указывает на статистический характер рентгеновского дифракционного сигнала и необходимость восстановления наиболее вероятного распределения наноразмерных объектов по типам их структуры в исследуемых плёнках. На рис. 1 приведены угловые зависимости интенсивности рассеянного излучения.

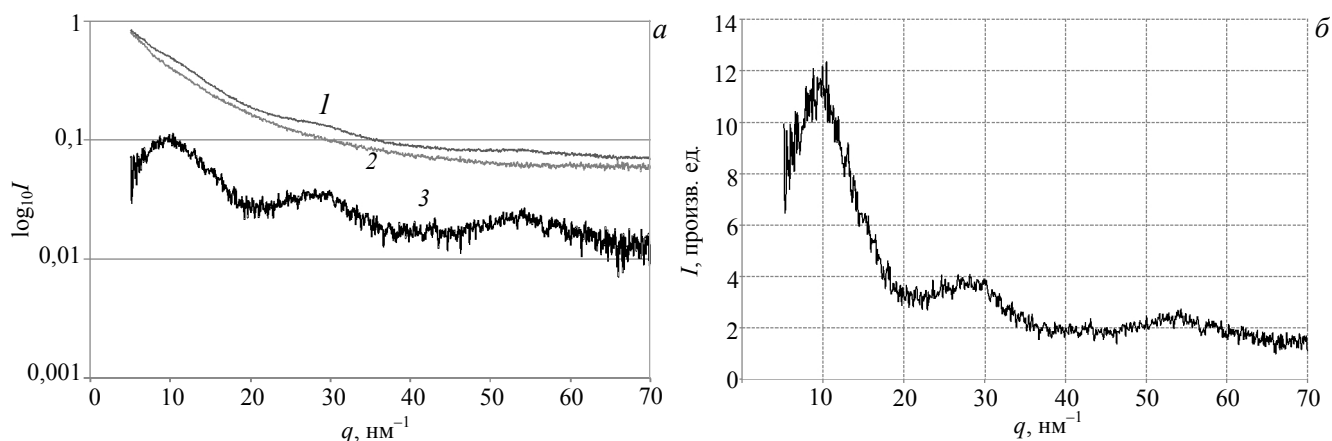


Рис. 1. Экспериментальная кривая интенсивности рентгеновского рассеяния для плёнки из токамака Т-10, полученная на источнике СИ с длиной волны зондирующего излучения $\lambda = 0,0464$ нм, а: 1 — рассеяние на образце; 2 — рассеяние на воздухе; 3 — разностная кривая (все кривые в логарифмической шкале интенсивности), по оси абсцисс отложен модуль вектора рассеяния $q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta_s/2)$ (θ_s — угол рассеяния); б — разностная кривая в линейной шкале интенсивности [11]

Проводилась дифрактометрия различных типов плёнок из токамака Т-10. Во всех случаях наблюдался широкий пик на $q = 5\text{--}20$ нм⁻¹, а также пики на $q = 30$ и 55 нм⁻¹.

В данной работе проведено сравнение теоретических профилей с кривой на рис. 1, б. Эта кривая выходит при $q \sim 70$ нм⁻¹ на некоторое предельное ненулевое значение. Это говорит о том, что в эксперименте присутствует некоторый фон, который необходимо вычитать. Далее на всех графиках под экспериментальной кривой будет пониматься кривая 1, б с вычтенным постоянным фоном. Значение $q \sim 10$ нм⁻¹, в котором находится подлежащий объяснению пик, отвечает рассеянию на стационарных флуктуациях плотности элементарных рассеивателей (т.е. атомов) в диапазоне размеров 0,6—1,2 нм. Выбор типов структуры объектов с соответствующими размерами следует сделать на основе анализа, состоящего в сопоставлении экспериментальной кривой интенсивности рассеянного излучения $S_{\text{exp}}(q)$ с расчётными функциями $S_{\text{theor}}(q)$ для основных потенциальных кандидатов.

В целом настоящую работу можно рассматривать как попытку восстановления трёхмерной структуры наноразмерных молекул углерода по данным рентгеновской дифрактометрии высокого разрешения (такая возможность, продемонстрированная впервые для цепных молекул [12], охватывает все более широкие классы наноструктур). Для восстановления структуризации на больших пространственных

масштабах, включая возможное упорядочение в расположении наноразмерных молекул, необходимо анализировать экспериментальные данные для малоуглового рассеяния ($q < 10 \text{ нм}^{-1}$). В настоящей работе мы ограничимся сформулированной задачей.

МОДЕЛИРОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКЦИИ НА УГЛЕРОДНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ

Общие формулы теории рассеяния. Амплитуда рассеяния ЭМ-волны на ансамбле идентичных атомов с координатами r_j имеет вид

$$A(\mathbf{q}) = f(q) \sum_j e^{i\mathbf{q}r_j}, \quad (1)$$

где $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$; $\mathbf{k}_0$ — вектор падающего излучения; $\mathbf{k}$ — вектор рассеянного излучения; $f(q)$ — амплитуда рассеяния на отдельном атоме (форм-фактор уединённого атома, в данной работе — атома углерода).

Задача расчёта амплитуды рассеяния для конкретных типов наноструктур сводится к алгоритму задания координат атомов в структуре. Далее будет приведён алгоритм задания координат атомов для углеродной нанотрубки. Интенсивность $S(q)$ вычисляется по формуле

$$S(\mathbf{q}) = \left| f(q) \sum_{i,j} e^{i\mathbf{q}r_{i,j}} \right|^2, \quad (2)$$

где сумма ведётся по атомам внутри структуры (индекс i) и по всем представленным в ансамбле структурам (индекс j); $r_{i,j}$ — вектор i -го атома в j -й структуре. В данной работе интенсивность рассеянного излучения будет рассчитываться в диапазоне углов рассеяния, для которых можно пренебречь корреляцией расположения отдельных наноструктур в изучаемом образце (в этом случае суммарная интенсивность равна сумме интенсивностей от рассеяния на уединённых наноструктурах).

Каждый элемент матричного представления интенсивности как функции двух углов является независимым от остальных, и поэтому задача расчёта интенсивности является хорошо распараллеливаемой. Многие из численных расчётов, приведённых в этом разделе, выполнены на вычислительном кластере в РНЦ «Курчатовский институт».

Рентгеновская дифракция на нанотрубках.

Подробно вывод амплитуды рассеяния на нанотрубках в приближении их бесконечной длины приведён в [13]. Здесь, используя метод [13], мы получим вид амплитуды рассеяния на трубках конечной длины. Суть этого метода заключается в том, что нанотрубку с индексами L, M (рис. 2, а) можно описать как совокупность винтовых атомных нитей радиусом

$$R = \frac{\sqrt{3}d_{CC}}{2\pi} \sqrt{L^2 + M^2 + LM} \text{ и периодом по } z, \text{ равным}$$

$$P = \frac{3d_{CC}L}{L + 2M} \sqrt{L^2 + M^2 + LM}, \text{ где } d_{CC} = 0,143 \text{ нм —}$$

расстояние между соседними атомами углерода в графене. Ось z направлена вдоль длины трубки рис. 2, б.

Координаты j -го атома на отдельной нити в цилиндрической системе координат имеют вид

$$\rho_j = R; z_j = z_0 + jp; \phi_j = \phi_0 + (2\pi/P)(z_j - z_0) = \phi_0 + 2\pi(p/P)j, \quad (3)$$

где ϕ_0 и z_0 — полярные координаты атома, от которого ведётся отсчёт. Тогда скалярное произведение в (1) принимает вид

$$\mathbf{q}r_j = q_\perp R \cos[\phi_q - \phi_0 - 2\pi(p/P)j] + q_z(z_0 + pj), \quad (4)$$

где $\phi_q = \arctang(q_y/q_x)$.

Амплитуда рассеяния (1) для одной винтовой нити запишется в виде

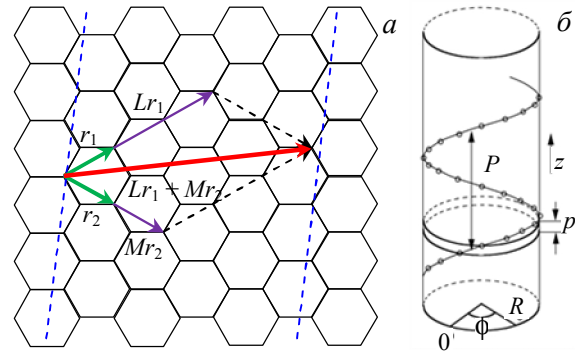


Рис. 2. Получение трубки (L, M) из графена: ----- — «склейка» графенового листа (а). Схема отдельной винтовой атомной нити из [13] (б), расстояние по оси z между соседними атомами в винтовой нити равно $p = \frac{3d_{CC}L}{2\sqrt{L^2 + M^2 + LM}}$

$$A_1(\mathbf{q}) = f(q) \sum_{j=1}^N \exp(i[q_{\perp} R \cos(\phi_q - \phi_0 - 2\pi(p/P)j) + q_z(z_0 + pj)]), \quad (5)$$

где $N = [l/p]$; l — длина трубки.

Атомы в винтовой нити образуют с соседней винтовой нитью зигзагообразную пару и смещены относительно атомов в соседней нити на величины $\Delta z_1 = d_{CC}(2L + M)/2\sqrt{L^2 + M^2 + LM}$ и $\Delta\phi_1 = \pi M/(L^2 + M^2 + LM)$. Подробнее см. в работе [13] формулы (1) и (4) и рис. 15.

Амплитуда рассеяния для указанной пары винтовых нитей имеет вид

$$A_2(\mathbf{q}) = A_1(\mathbf{q}) + f(q) \sum_{j=1}^N \exp(i[q_{\perp} R \cos(\phi_q - \phi_0 - 2\pi(p/P)j - \Delta\phi_1) + q_z(z_0 + pj + \Delta z_1)]). \quad (6)$$

Нанотрубка (L, M) состоит из L таких зигзагообразных пар, причём атомы k -й пары смещены относительно атомов нулевой на величины $\Delta z_k = -3d_{CC}Mk/2\sqrt{L^2 + M^2 + LM}$ и $\Delta\phi_k = \pi(2L + M)k/(L^2 + M^2 + LM)$. Подробнее см. в работе [13] формулы (2) и (4) и рис. 15. Тогда формула для амплитуды k -й пары $A_{2k}(q)$ получается из формулы (6) добавлением слагаемого $-\Delta\phi_k$ под косинусы и заменой $z_0 + pj$ на $z_0 + pj + \Delta z_k$.

В итоге амплитуда рассеяния от одной нанотрубки имеет вид

$$A(\mathbf{q}) = \sum_{k=0}^{L-1} A_{2k}(\mathbf{q}). \quad (7)$$

На рис. 3 показано, каким образом проявляется зависимость интенсивности рассеяния на отдельной нанотрубке, рассчитанной по формулам (1)—(7) и нормированной на число атомов в нанотрубке, от её длины. На рисунке видно, что с уменьшением длины нанотрубки дифракционные линии утолщаются, а положение линий не меняется. Нас будет интересовать одномерный, т.е. усреднённый по полярному углу профиль интенсивности. Уже при аспектных отношениях $l/D \geq 5$, где l — длина, D — диаметр трубки, одномерный профиль интенсивности, делённый на число атомов, не будет зависеть от длины трубки. Далее все приведённые результаты даны для аспектного отношения $l/D \sim 5$.

Далее мы преимущественно исследуем случай однородного распределения наноструктур по направлениям их ориентации. Это позволяет провести усреднение интенсивности $S(q)$ по углам, описывающим ориентацию наноструктуры.

Рентгеновская дифракция на других углеродных наноструктурах. Кроме расчёта дифракции на одностенных нанотрубках, нами проведён расчёт дифракции на ряде других объектов: фуллеренах, графеновых листах, многостенных углеродных нанотрубках, нанокристаллах графита и нанотороидах (о возможных параметрах углеродных нанотороидов см. [14—16]). Результаты представлены на рис. 4—8.

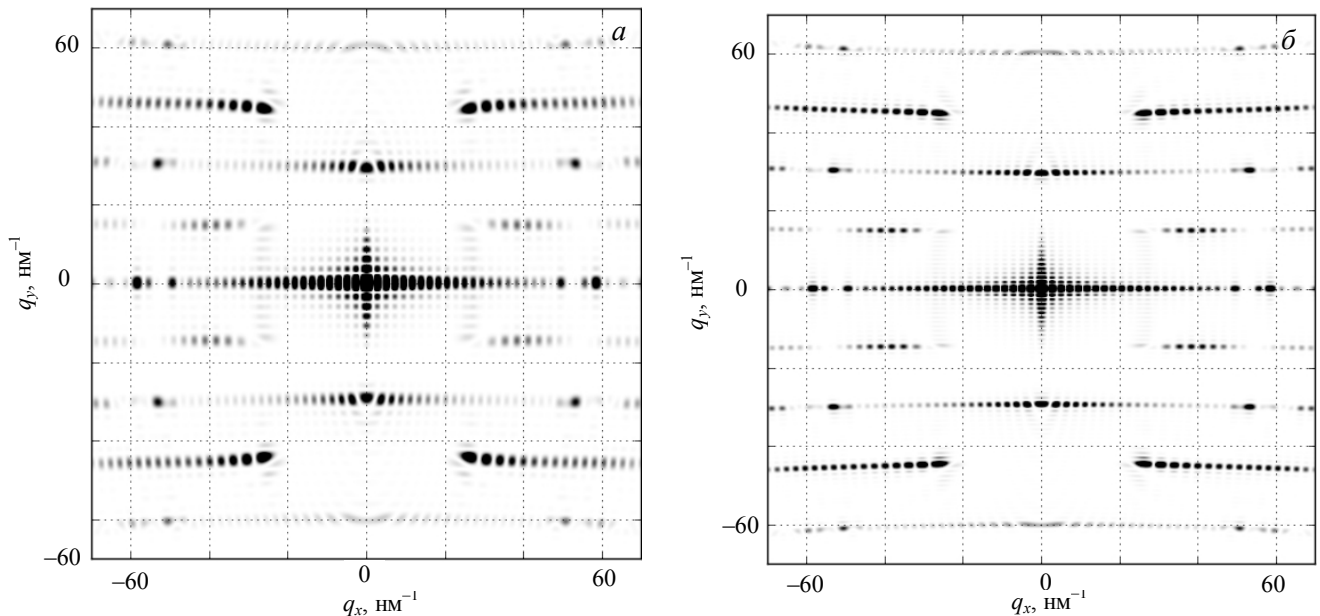


Рис. 3. Дифракционная картина рассеяния от одной нанотрубки (36,0), рассчитанная по формулам (1)—(7). Нанотрубка расположена вертикально в плоскости рисунка. Длина волны падающего излучения $\lambda = 0,0464$ нм: а — $l/D < 1$; б — $l/D = 2$ (ср. с рис. 25, а из [13] для такой же трубки, но рассчитанной в приближении $l/D \rightarrow \infty$)

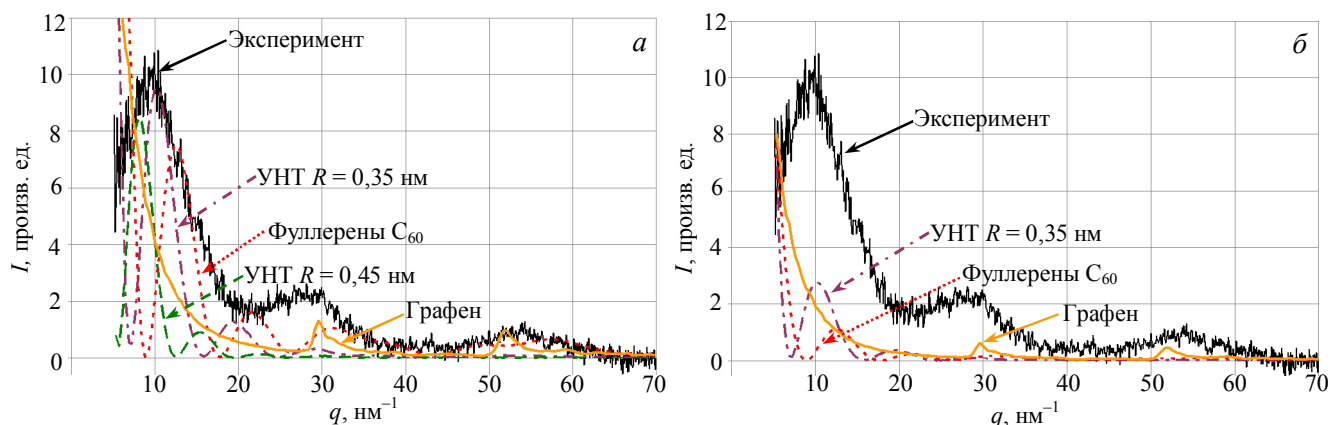


Рис. 4. Сравнение наблюдаемого распределения $S_{\text{exp}}(q)$ с возможным вкладом в него рассеяния на углеродных нанотрубках (УНТ) (разных радиусов), фуллеренах и листах графена для случайной (т.е. однородной по углам) пространственной ориентации наноструктур (см. также трубки с $R = 0,4$ нм на рис. 5). Расчётные кривые нормированы так, чтобы они не превышали наблюдаемую кривую в области желаемого совпадения: для графена — в пиках от шестигранников ($q \sim 30$ и ~ 55 nm^{-1}), для фуллеренов и нанотрубок — в центральной области пика на $q \sim 10$ nm^{-1} (ср. $S(q)$ для фуллерена на рис. 1 из [18]) (а); сравнение наблюдаемого распределения $S_{\text{exp}}(q)$ с возможным вкладом углеродных нанотрубок $R \approx 0,35$ нм, фуллеренов и листов графена в том же случае, что и на а, но с такой нормировкой расчётных профилей, чтобы они нигде не превышали экспериментальную кривую (т.е. фактически по левому краю исследуемого экспериментального профиля) (б)

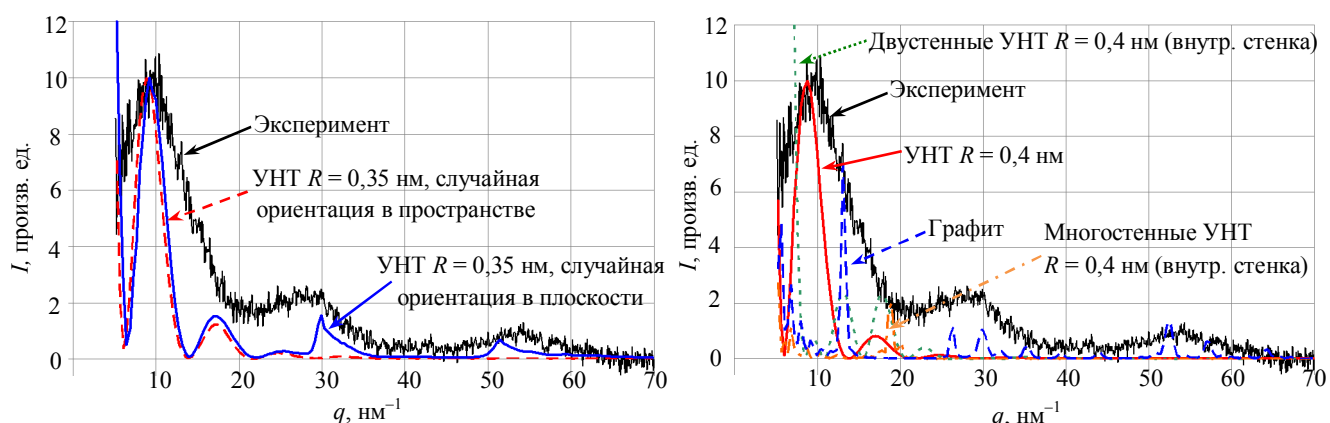


Рис. 5. Сравнение наблюдаемого распределения $S_{\text{exp}}(q)$ с возможным вкладом углеродных нанотрубок в двух случаях: случайной трёхмерной ориентации нанотрубок и случайной ориентации в плоскости, ортогональной направлению зондирования. Расчётные кривые нормированы так, чтобы они не превышали наблюдаемую кривую в центральной области пика на $q \sim 10$ nm^{-1}

Рис. 6. Сравнение наблюдаемого распределения $S_{\text{exp}}(q)$ с возможным вкладом одностенных и многостенных углеродных нанотрубок, аппроксимированных трубками с однородными стенками, а также кристалла графита. Расчётные кривые нормированы так, чтобы они не превышали наблюдаемую кривую в центральной области пика на $q \sim 10$ nm^{-1} и везде правее

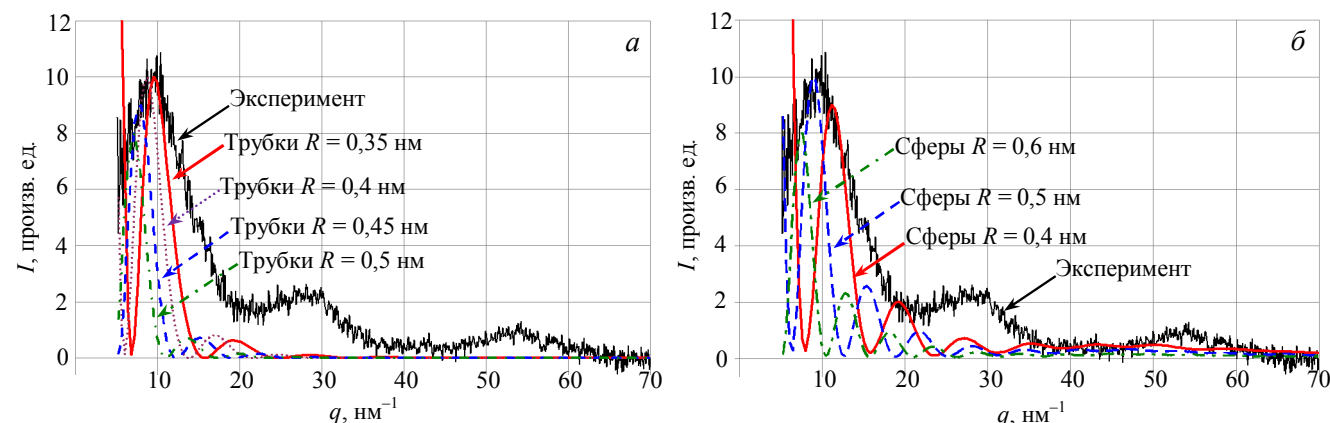


Рис. 7. Сравнение вкладов трубок (а) и сфер (б) различного радиуса. Расчётные кривые нормированы так, чтобы они не превышали наблюдаемую кривую в центральной области пика на $q \sim 10$ nm^{-1}

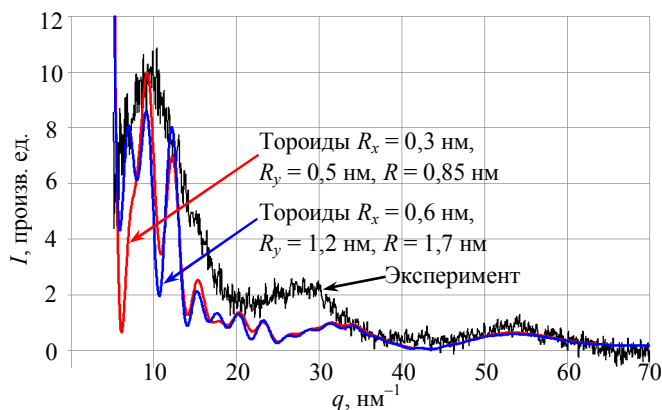


Рис. 8. Сравнение вкладов различных ториев, обладающих размерами, близкими к нанотрубке минимального радиуса, свёрнутой в тороид и сплюсненной в её поперечном сечении в направлении большого радиуса тора. Возможность включения таких структур подсказывается, в частности, расчётами [16]. Указаны большой радиус тора R , большой R_y и малый R_x радиусы эллипса в поперечном сечении тора (отметим, что в [16] указаны диаметры на внешнем $D + D_x/2$ и внутреннем обводе $D - D_x/2$ и высота в поперечном сечении D_y)

Основная сложность заключается в расчёте правильных положений атомов на поверхности тороида [16]. Однако, как показали расчёты дифракции на других объектах, положение атомов на поверхности наноструктуры не оказывает влияние на кривую рассеяния в диапазоне $q = 5\text{—}20\text{ нм}^{-1}$. Описанию того, как можно приближенно учесть «графеновость» стенки тороидов (и других неплоских нанобъектов), посвящён последний подраздел этого раздела.

Явно выраженные пики на $q \sim 30$ и $\sim 55\text{ нм}^{-1}$ обусловлены рассеянием на шестигранниках из углеродных атомов. Отсутствие пиков на $q \sim 10\text{ нм}^{-1}$ у вклада уединённых плоских листов графена указывает на их второстепенную роль в наблюдаемых пиках на $q \sim 30$ и $\sim 55\text{ нм}^{-1}$. Поэтому эти пики обусловлены наличием свёрнутых, неплоских листов графена (т.е. углеродных нанотрубок радиусом $R > 0,4\text{ нм}$, углеродных сфер с $R > 0,45\text{ нм}$ или эллипсоидов, но только не фуллеренов C_{60} , для которых $R \approx 0,35\text{ нм}$).

Вариация пространственной ориентации наноструктур сказывается на форме «графеновых» пиков на $q \sim 30$ и $\sim 55\text{ нм}^{-1}$ и отношении их высоты к пику на $q \sim 10\text{ нм}^{-1}$. Форма пика на $q \sim 10\text{ нм}^{-1}$ оказывается слабо зависящей от ориентации наноструктуры.

Такая же картина и для зависимости от ориентации шестигранников (или многоугольников близкой кратности: пяти- и семигранников) на поверхности наноструктуры (в частности, для зависимости от кривизны нанотрубок, характеризующей ориентацию шестигранников в стенке трубки).

Исходя из слабой зависимости формы пика на $q \sim 10\text{ нм}^{-1}$ от ориентации всей наноструктуры, нами на первом этапе предлагается искать решение в классе однородных распределений наноструктур по их трёхмерной пространственной ориентации. Все приведённые результаты даны для этого случая.

Для определения типов структур, возможно, ответственных за пики на экспериментальной кривой, и оценки интервалов их параметров нет необходимости учитывать точное положение атомов в стенке структуры, так как оно не влияет на пик на $q \sim 10\text{ нм}^{-1}$. Оценочные расчёты можно проводить для равномерного (а где это возможно, континуального) распределения атомов по стенке структуры.

Резкая сосредоточенность вклада многостенных углеродных нанотрубок в области $q \sim 19\text{ нм}^{-1}$, где наблюдаемый сигнал относительно мал, указывает на их относительно малую роль. Уже для двустенных нанотрубок их вклад играет второстепенную роль в наблюдаемом спектре (это видно особенно хорошо, если их кривую нормировать по левому краю экспериментальной кривой).

Расположение пиков от нанотрубок в диапазоне $q \sim 10\text{ нм}^{-1}$ и малость их ширины указывают на:

- доминирование нанотрубок с радиусом $R \sim 0,4\text{—}0,5\text{ нм}$ над трубками других радиусов;
- недостаточность вклада одностенных углеродных нанотрубок для объяснения экспериментальных данных.

При расчёте дифракции на фуллеренах использованы координаты атомов фуллерена, в явном виде приведённые в [17]. Расчёт амплитуды рассеяния на многостенных трубках производится по формуле (7), но с добавлением внешней суммы по слоям трубки. Размер графенового листа, начиная с которого зависимость профиля интенсивности от него становится незначительной, равен приблизительно 50×40 атомов.

Сложность расчёта дифракции на графите заключается в сильной зависимости профиля интенсивности от числа графеновых слоёв, состоящей в том, что добавление каждого нового слоя приводит к уменьшению ширины дифракционных пиков. Поэтому приведённые на рис. 4 результаты расчётов для нанокристаллов графита, образованных двадцатью листами графена, носят качественный характер.

При расчёте дифракции на нанотороидах ос-

«Залезание» главного пика от дифракции на сфере с $R \sim 0,4$ нм в область наблюдаемого пика на $q \sim 10 \text{ нм}^{-1}$ указывает на малость вклада фуллеренов C_{60} ($R \sim 0,35$ нм) и возможность вклада сфер или эллипсоидов немного больших размеров.

Видно, что «графеновые» тороиды (но с размером, несколько больше, чем у тороидов, смоделированных в [16]) могут давать ощутимый вклад в наблюдаемый пик на $q \sim 10 \text{ нм}^{-1}$.

Приближенный учёт вкладов графеновой структуры стенки нанобъектов в кривые интенсивности рентгеновского рассеяния. Расширение класса исследуемых объектов, возможно, ответственных за особенности на экспериментальной кривой интенсивности рентгеновского рассеяния, привело к необходимости вычисления вклада от графеновой (точнее, околографеновой) структуры стенки тех объектов, для которых не известно точное положение атомов в стенке.

На рис. 9 видна приближенная универсальность вклада шестигранников случайной ориентации. Эта универсальность выражается в слабой зависимости вклада шестигранников (и минорной доли пятигранников) от того типа наноструктуры, которую они образуют. Это и позволяет рассчитывать пики на $q \sim 30$ и $\sim 55 \text{ нм}^{-1}$ приближенно.

Мы предлагаем следующую модель расчёта этих пиков. В формуле

$$I(\mathbf{q}) = f_C^2(q) \left| \sum_{j=1}^n e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_j} \right|^2 = f_C^2(q) \sum_{j=1}^n \sum_{k=1}^n \cos(\mathbf{q}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k)) \quad (8)$$

нужно «разделить» двойное суммирование по следующему алгоритму.

Сначала рассмотрим случай плоской поверхности:

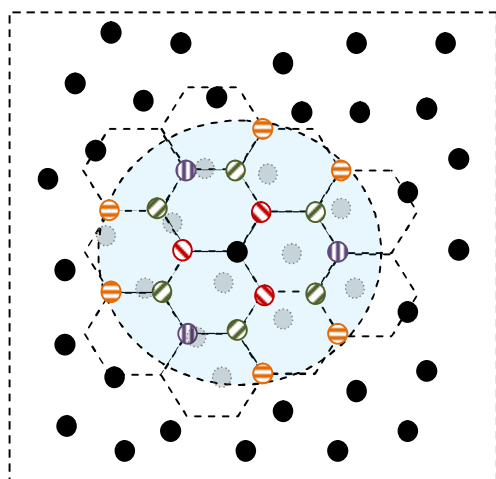
1. На поверхности равномерно разбрасываются атомы с сохранением средней плотности атомов листа графена. На рис. 10 это чёрные и серые (полупрозрачные) точки;

2. Затем для j -го атома вводится некоторый радиус и убираются все атомы (серые точки), попавшие внутрь этого радиуса. Радиус выбирается исходя из того, до какого порядка требуется учесть корреляции;

3. Вместо убранных атомов вводятся новые атомы, расположенные относительно j -го атома так, как они должны быть расположены в графене (заштрихованные точки);

4. Вычисляется сумма по k с учётом произведённой замены;

5. Повторяются пункты 2—4 для каждого j -го атома.



Для плоского графена, нм:

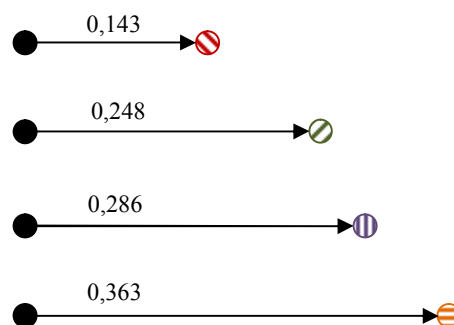


Рис. 10. Учёт корреляций расположения атома с его ближайшими соседями на плоской поверхности

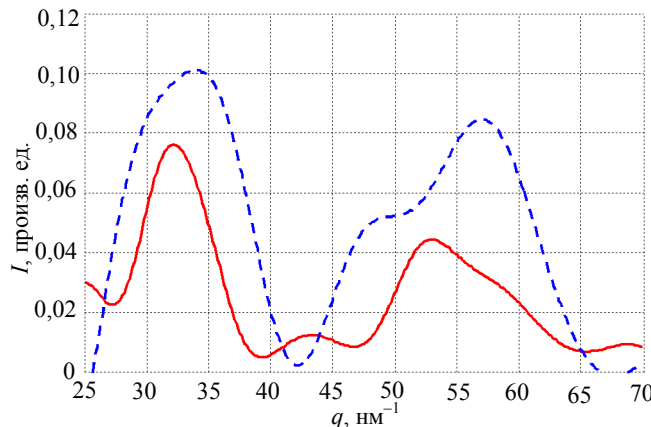


Рис. 9. Расчёт вклада шестигранников в неплоском графене случайной ориентации, полученный как следующая разность: — — рассеяние на нанотрубках (случайной ориентации) за вычетом рассеяния на полых трубках (случайной ориентации) такого же радиуса (конкретно, с радиусом как у фуллерена, 0,35 нм) с однородной стенкой; ---- — рассеяние на фуллеренах C_{60} (случайной ориентации) за вычетом рассеяния на сфере такого же радиуса с однородной стенкой (напомним, что в случае фуллерена около одной трети вклада дают пятигранники)

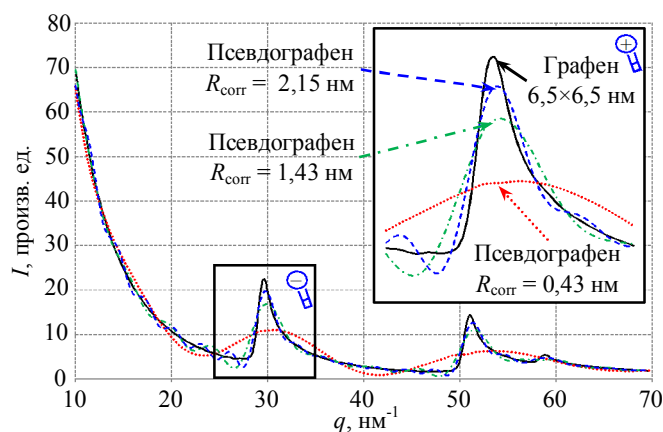


Рис. 11. Зависимость кривой интенсивности рентгеновского рассеяния для плоского листа от радиуса корреляции и сравнение модельного расчёта с расчётом для плоского листа графена. Расчёт проводился в приближении изотропной ориентации структур (т.е. по формуле Дебая)

атома, см. рис. 10) полярных угла уже известны из предыдущего шага;

3.4. На рис. 10 видно, что уже при определении положения атомов 3-го порядка (точки с вертикальной штриховкой) появится неопределённость, так как их положение можно рассчитать двояко. В нашей модели положение «неопределённых» атомов выбирается как среднее (по поверхности) между двумя расчётами. Так как это вносит ошибку, ожидать высокой точности при учёте высоких порядков не следует.

Можно обобщить предложенную модель таким образом, чтобы учитывать наличие в неплоском графене пятигранников и семигранников из атомов, однако в нашей работе такое обобщение не проводилось. Также следует отметить, что графеновая структура стенки влияет и на геометрические параметры самого объекта. Так, для нанотрубок разрешены только определённые соотношения киральности и радиуса, а для фуллеренов — только определённые конфигурации. В настоящей работе вопрос о принципиальной возможности существования исследуемых нанообъектов не решался. Это оправдано тем, что должны существовать если не сами исследуемые объекты из достаточно большого числа атомов (примерно втрое превышающего это число в структурах, рассчитанных в [16]), то достаточно близкие к ним по геометрическим параметрам.

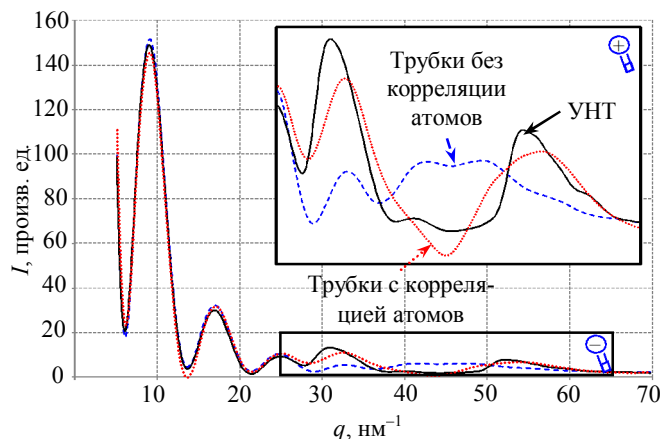


Рис. 12. Кривые интенсивности рентгеновского рассеяния для модельных трубок с корреляцией 4-го порядка для ближайших соседей, без такой корреляции и для УНТ. Радиус трубок ~0,4 нм. Для УНТ проведено усреднение по киральному углу. Расчёт проводился по формуле Дебая

На рис. 11 показана зависимость кривой интенсивности рентгеновского рассеяния от выбранного радиуса корреляции для описываемой модели.

Для неплоской поверхности пункт 3 описанного алгоритма будет другим:

3.1. В точку r_j помещается центр сферы радиусом 0,143 нм;

3.2. В сферической системе координат фиксируются полярные углы ϕ_0 , $\phi_0 + 120^\circ$, $\phi_0 + 240^\circ$. Положения соседних атомов определяют азимутальные углы θ , при которых в заданных полярных углах имеется пересечение сферы с поверхностью;

3.3. Затем эта процедура повторяется на только что «посаженных» соседних атомах с той разницей, что один или два (это зависит от порядка этого соседнего атома относительно исходного

атома, см. рис. 10) полярных угла уже известны из предыдущего шага;

На рис. 12 приведено сравнение кривых рентгеновского рассеяния на трубках, рассчитанных с учётом корреляций ближайших атомов по нашей модели, с кривыми для нанотрубок с точным расположением атомов в стенке и для трубок с произвольным расположением атомов в стенке.

ПОИСК ВОЗМОЖНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ НАНОСТРУКТУР ПО ТОПОЛОГИИ И РАЗМЕРУ МЕТОДАМИ ЛИНЕЙНОЙ И КВАДРАТИЧНОЙ ОПТИМИЗАЦИИ

Оптимизация при фиксированном значении фона. Поиск возможного распределения углеродных наноструктур по топологии и размеру в диагностируемом материале, максимально приближающего суммарную модельную кривую рентгеновского рассеяния к экспериментальной, проводился на классах структур со следующими параметрами:

— трубки: $0,4 \text{ нм} \leq R \leq 0,6 \text{ нм}$;

— сферы и эллипсоиды: $0,5 \text{ нм} \leq R_x \leq 0,7 \text{ нм}$, $R_x \leq R_y \leq 2R_x$;

— тороиды с эллиптическим сечением: $0,85 \text{ нм} \leq R \leq 1,25 \text{ нм}$, $0,3 \text{ нм} \leq R_x \leq 0,4 \text{ нм}$, $0,5 \text{ нм} \leq R_y \leq 0,9 \text{ нм}$.

Всего было выбрано $n = 154$ структуры. Отметим, что результаты численных расчётов, приведённых в предыдущем разделе, позволили значительно сузить число структур, которым уместно участвовать в такой оптимизации.

Численное моделирование кривых рентгеновского рассеяния проводилось в приближении изотропии ориентации искоемых наноструктур в исследуемых образцах (это позволяет использовать известную формулу Дебая). Точный расчёт расположений атомов в стенке выбранных нанообъектов не выполнялся, вместо этого вклад в кривую рассеяния от «графеновой» структуры стенки был учтён приближенно специально разработанным нами и протестированным методом, изложенным ранее. Все рассчитанные кривые S_i для каждой структуры под номером i были нормированы на число атомов в этой структуре, что позволило в явном виде выделить в оптимизационной процедуре вероятность атома принадлежать одной из рассмотренных структур. Фон, присутствующий в экспериментальных данных, считался равномерным по углу и был выбран таким образом, чтобы экспериментальный график интенсивности за вычетом фона выходил на нуль при больших значениях модуля вектора рассеяния q .

Поиск оптимального структурного состава осуществлялся тремя способами минимизации отклонений результирующей расчётной кривой от эксперимента: 1) минимизацией суммы абсолютных значений отклонений; 2) минимизацией суммы квадратов отклонений; 3) минимизацией наибольшего абсолютно значения отклонения. Таким образом, оптимизации проводились по такой схеме:

$$1) \sum_{j=1}^m |Z_j(\mathbf{x})|; \quad 2) \sum_{j=1}^m (Z_j(\mathbf{x}))^2; \quad 3) \max_{j=1:m} \{|Z_j(\mathbf{x})|\}; \quad \xrightarrow{\mathbf{x} \in \mathbb{R}^n} \min \quad (9)$$

$$Z_j(\mathbf{x}) = S_{\text{exp}}(q_j) - \sum_{i=1}^n S_i(q_j) x_i \geq -0,5 \quad (j = 1:m); \quad (10)$$

$$x_i \geq 0 \quad (i = 1:n). \quad (11)$$

Здесь j — номер точки из дискретного набора значений модуля вектора рассеяния; m — число экспериментальных точек; S_{exp} — наблюдаемое распределение сигнала; i — номер наноструктуры; n — полное число структур. В задаче требуется определить набор переменных x_i , $i = 1:n$, где x_i — наиболее вероятное число атомов углерода, принадлежащих i -й структуре.

Выражение для отклонения $Z_j(\mathbf{x})$ является линейным по переменным x_i . Благодаря этому за счёт введения дополнительных переменных для критериев 1 и 3 из (9) задача определения структурного состава сводится к двум задачам линейного программирования, для решения которых применялся пакет GLPK (GNU Linear Programming Kit, <http://www.gnu.org/software/glpk/>). Для критерия 2 наличие условий (11) (неотрицательности «переменных регрессии» x_i) не позволяло применить стандартный метод «наименьших квадратов» и приводило к задаче квадратичного программирования, для решения которой применялся пакет нелинейной оптимизации MINOS, доступный для удалённого использования на серверах проекта NEOS, <http://neos.mcs.anl.gov/>.

Результаты оптимизации по трём критериям приведены на рис. 13—16¹:

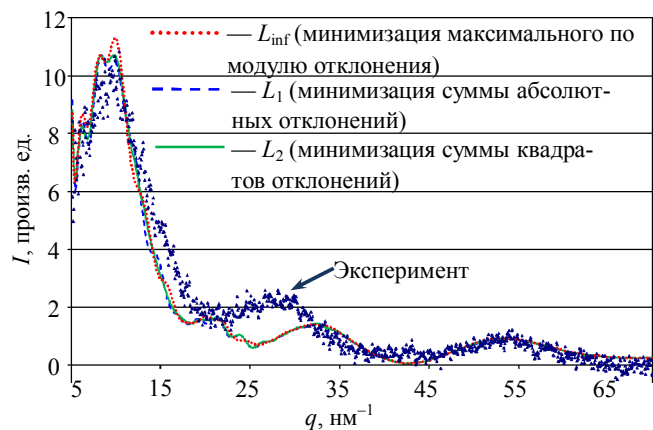


Рис. 13. Сравнение модельных кривых, полученных в результате минимизации по трём различным критериям, с экспериментом

¹ Используемые далее обозначения L_1 , L_2 и L_{inf} соответствуют принятым в литературе обозначениям для различных норм вектора отклонений $z \in \mathbb{R}^m$: $\ell_1: \|z\|_1 \doteq \sum_j |z_j|$, $\ell_2: \|z\| \doteq \sum_j (z_j)^2$ и $\ell_\infty: \|z\|_\infty \doteq \max_j \{|z_j|\}$.

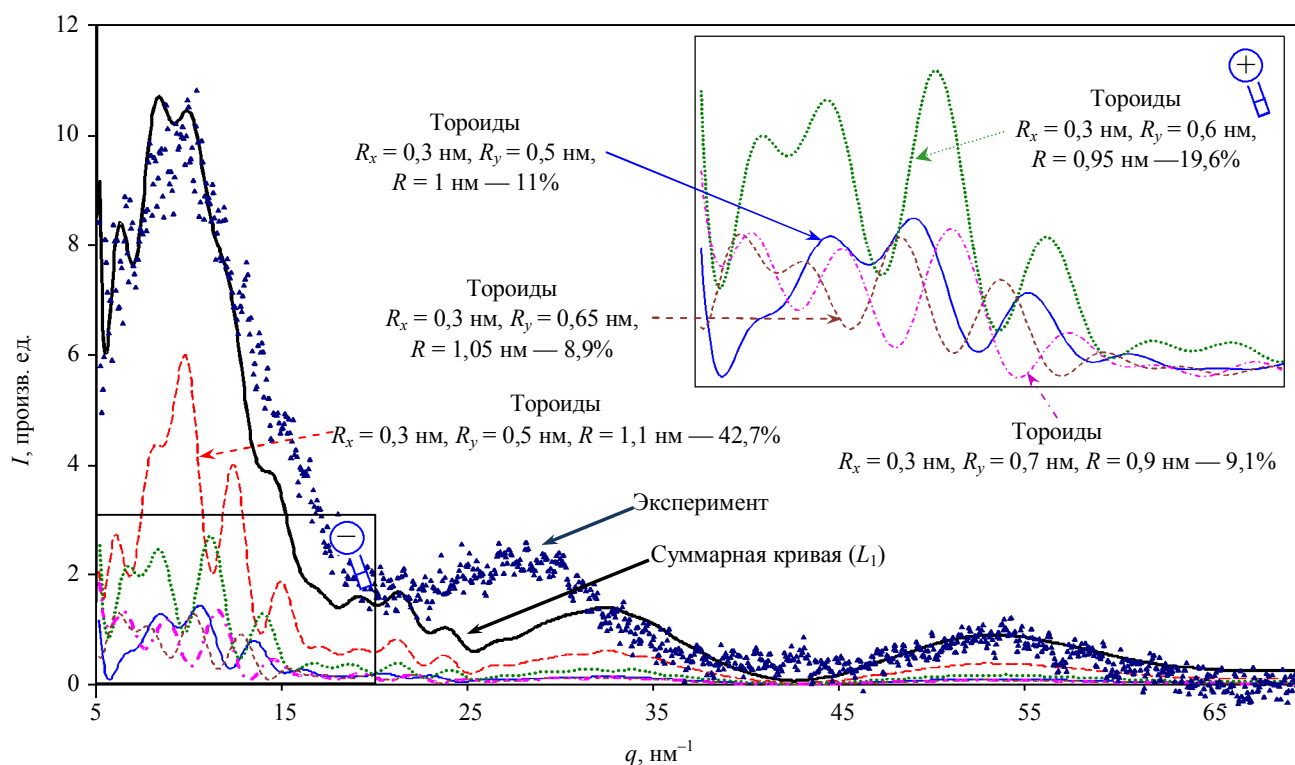


Рис. 14. Сравнение модельной кривой, полученной минимизацией суммы абсолютных отклонений, с экспериментом. Указаны наиболее значительные парциальные вклады отдельных наноструктур

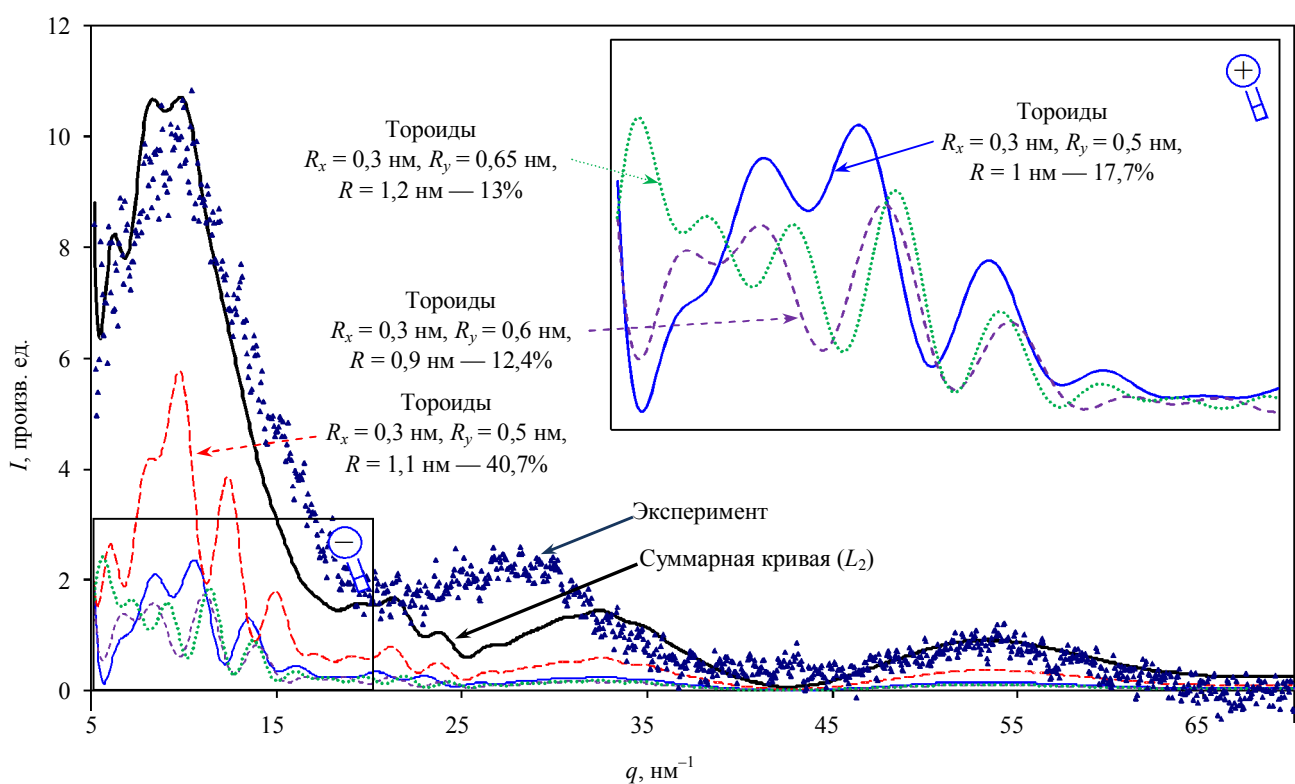


Рис. 15. Сравнение модельной кривой, полученной минимизацией суммы квадратов отклонений, с экспериментом. Указаны наиболее значительные парциальные вклады отдельных наноструктур

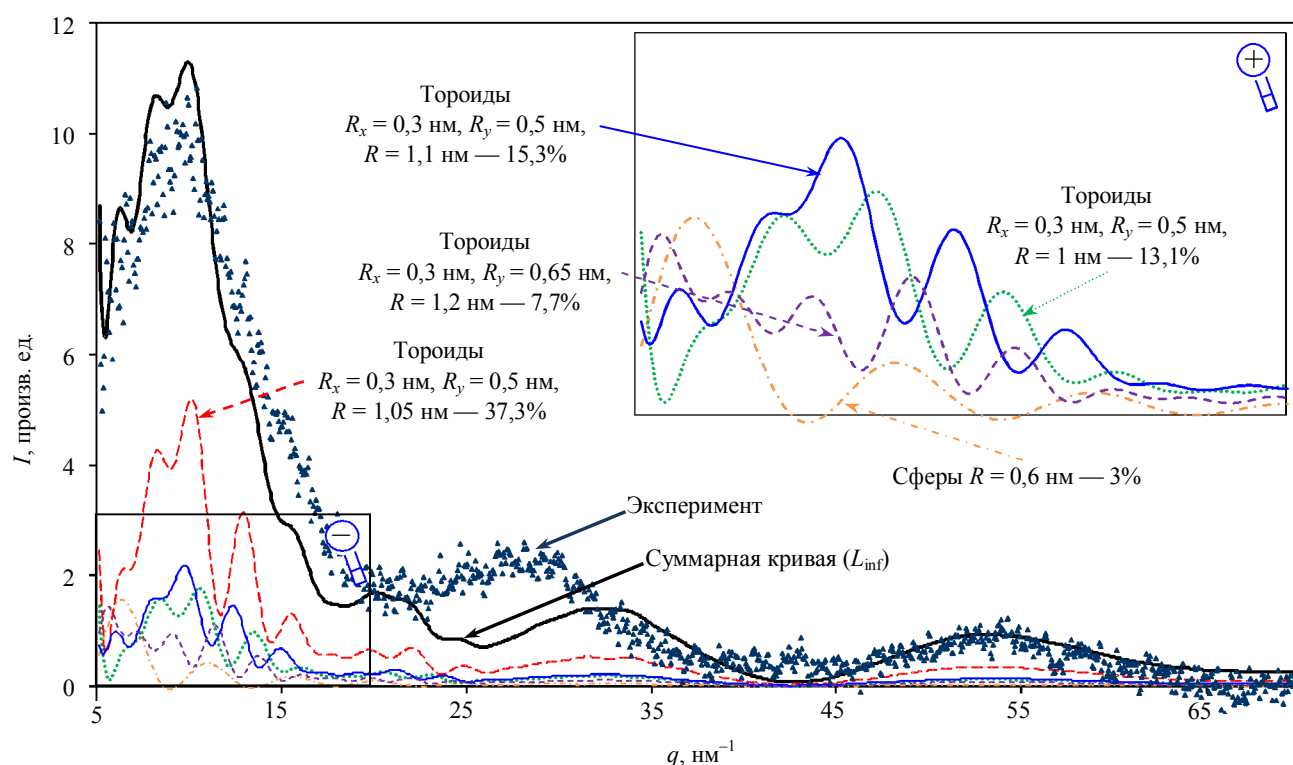


Рис. 16. Сравнение модельной кривой, полученной минимизацией максимального по модулю отклонения, с экспериментом. Указаны наиболее значительные парциальные вклады отдельных наноструктур

Т а б л и ц а 1. Сравнение характеристик наноструктур, имеющих по результатам оптимизации ненулевые вероятности атома принадлежать данной структуре, для трёх различных критериев оптимизации

Число атомов	Топология	$R_x, \text{ нм}$	$R_y, \text{ нм}$	$R, \text{ нм}$	$L_1, \%$	$L_2, \%$	$L_{inf}, \%$
362	Сфера			0,6	0	0	3
631	Тороид	0,3	0,5	1	11	17,6	13,1
663		0,3	0,5	1,05	0	0	37,3
675		0,3	0,6	0,95	19,6	12,4	2
675		0,3	0,65	0,9	0	4,1	0,9
694		0,3	0,5	1,1	42,6	40,6	15,1
710		0,3	0,7	0,9	9,1	0	0
710		0,3	0,6	1	0	3,1	0
712		0,3	0,65	0,95	0	0	6,5
726		0,3	0,5	1,15	0	0	5,4
757		0,3	0,5	1,2	2,3	0	1,9
787		0,3	0,65	1,05	8,9	8,6	0
789		0,3	0,5	1,25	0,4	0	0
789		0,3	0,7	1	2,2	0	0
862		0,3	0,65	1,15	0	0	7,1
900		0,3	0,65	1,2	0	13	7,7
907		0,3	0,7	1,15	2,6	0,6	0
947		0,3	0,7	1,2	1,3	0	0

Оптимизация при включении значения фона в процедуру оптимизации. В этом подходе параметры фона, присутствующего в экспериментальных данных, также являлись объектом оптимизации. Фон задавался по правилу $S^{\text{back}}(q_j) = (f_c(q_j))^2 a + b$, где f_c — форм-фактор изолированного атома углерода,

a и b — некоторые положительные величины, подлежащие определению в процессе оптимизации. Мы пренебрегли фоном от более тяжёлых элементов в силу их малого вклада в рассматриваемый диапазон углов рассеяния, а также фоном от атомов водорода в силу слабой чувствительности рентгеновской дифрактометрии к лёгким элементам. Таким образом, оптимизация проводилась по несколько более сложной схеме:

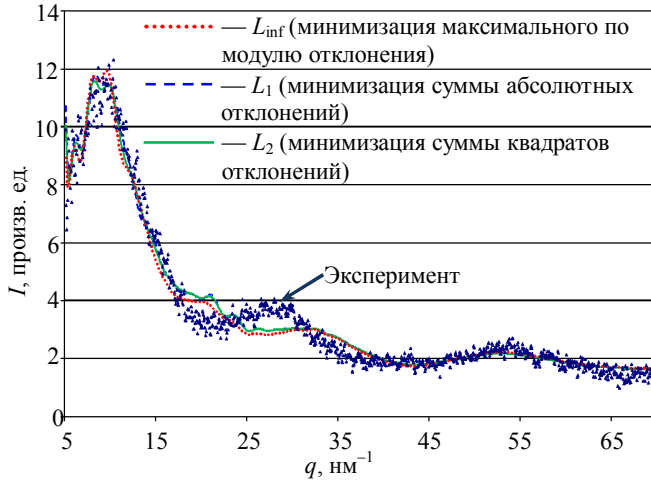


Рис. 17. Сравнение модельных кривых, полученных в результате минимизации по трём различным критериям, с экспериментом

$$1) \sum_{j=1}^m |Z_j(\mathbf{x}, a, b)|; \quad 2) \sum_{j=1}^m (Z_j(\mathbf{x}, a, b))^2; \\ 3) \max_{j=1:m} \{|Z_j(\mathbf{x}, a, b)|\}; \quad \xrightarrow{x, a, b} \min; \quad (12)$$

$$Z_j(\mathbf{x}, a, b) = S_{\text{exp}}(q_j) - \sum_{i=1}^n S_i(q_j) x_i - \\ - (f_c(q_j))^2 a - b \geq -0,5 \quad (j = 1:m); \quad (13)$$

$$S_{\text{exp}}(q_j) - (f_c(q_j))^2 a - b \geq -0,5 \quad (j = 1:m); \quad (14)$$

$$x_i \geq 0 \quad (i = 1:n), \quad (15)$$

где значение $-0,5$ в формуле (13) было выбрано таковым, исходя из приблизительной максимальной абсолютной погрешности эксперимента. Результаты оптимизации по трём критериям приведены на рис. 17—20:

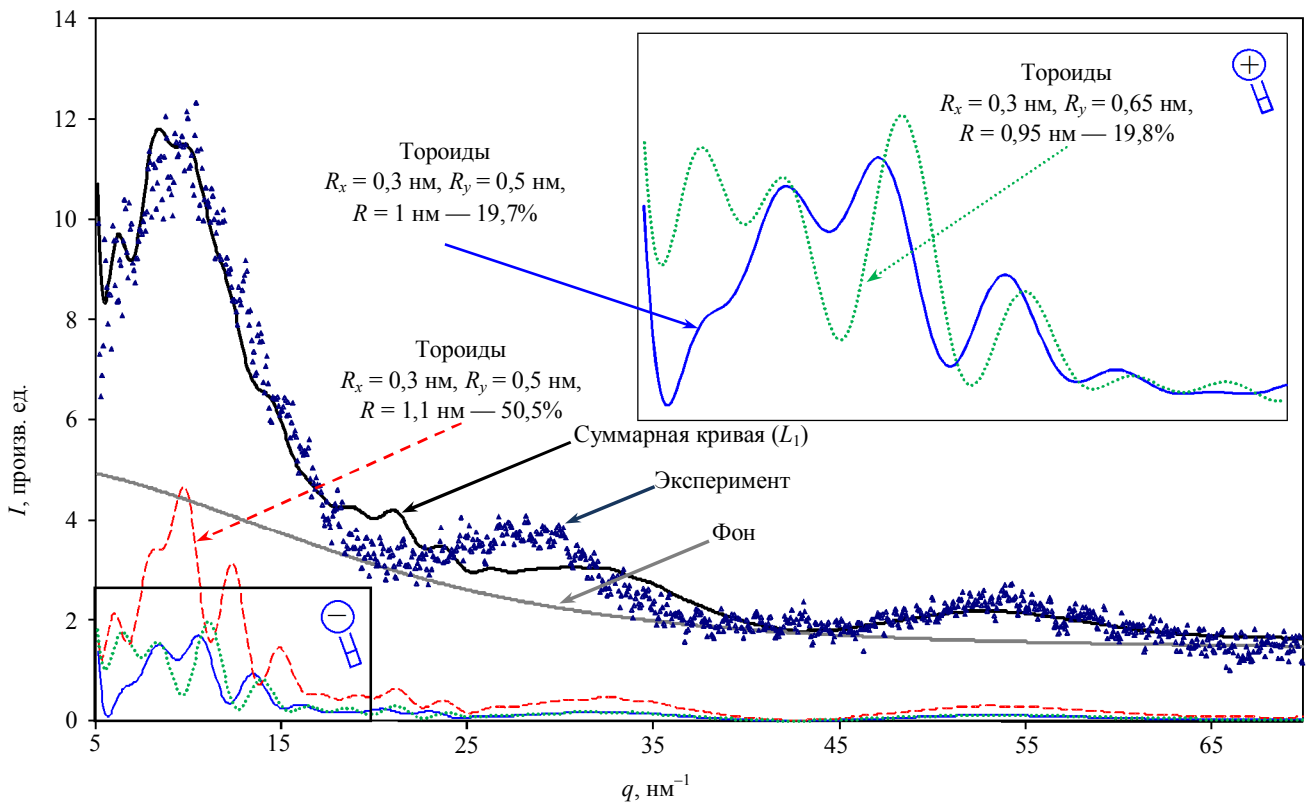


Рис. 18. Сравнение модельной кривой, полученной минимизацией суммы абсолютных отклонений, с экспериментом. Указаны наиболее значительные парциальные вклады отдельных наноструктур, а также фона в виде $0,11 f_c^2 + 1,21$

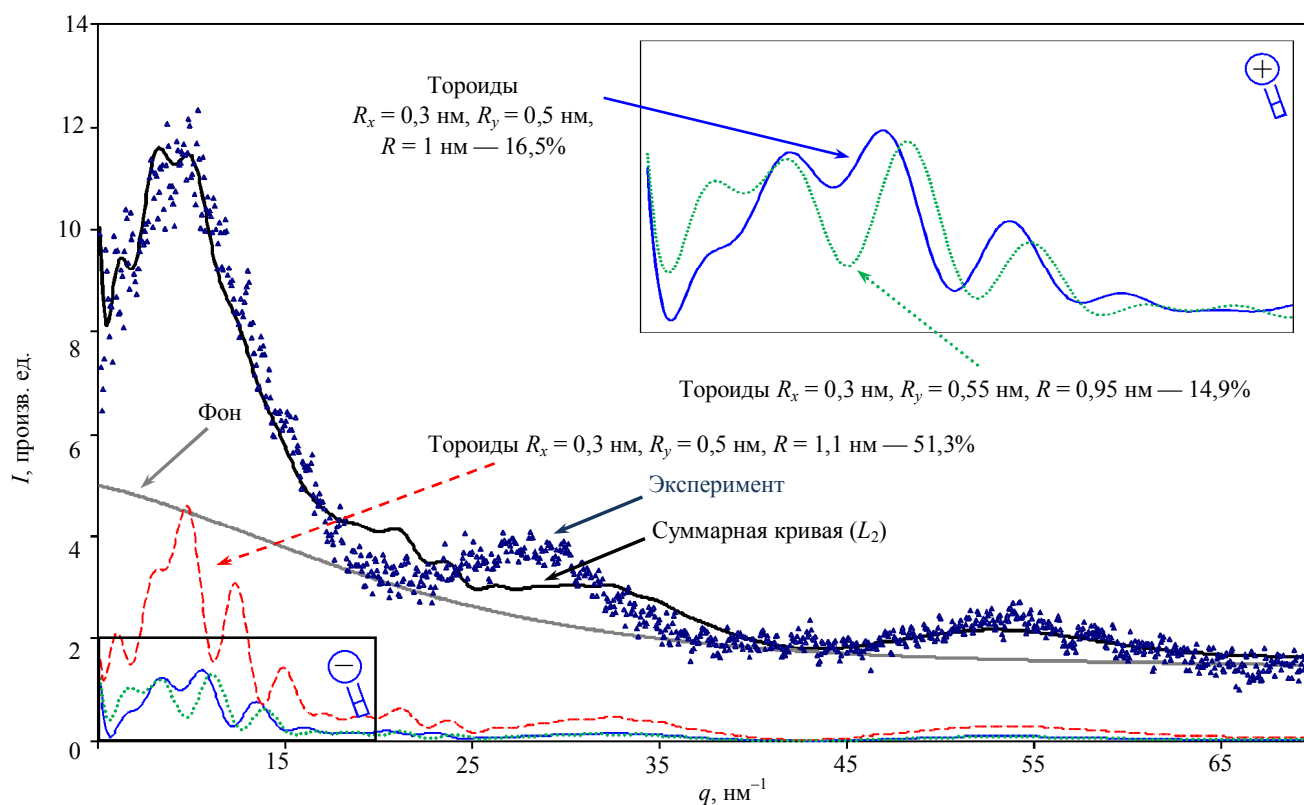


Рис. 19. Сравнение модельной кривой, полученной минимизацией суммы квадратов отклонений, с экспериментом. Указаны наиболее значительные парциальные вклады отдельных наноструктур, а также фона в виде $0,11 f_C^2 + 1,21$

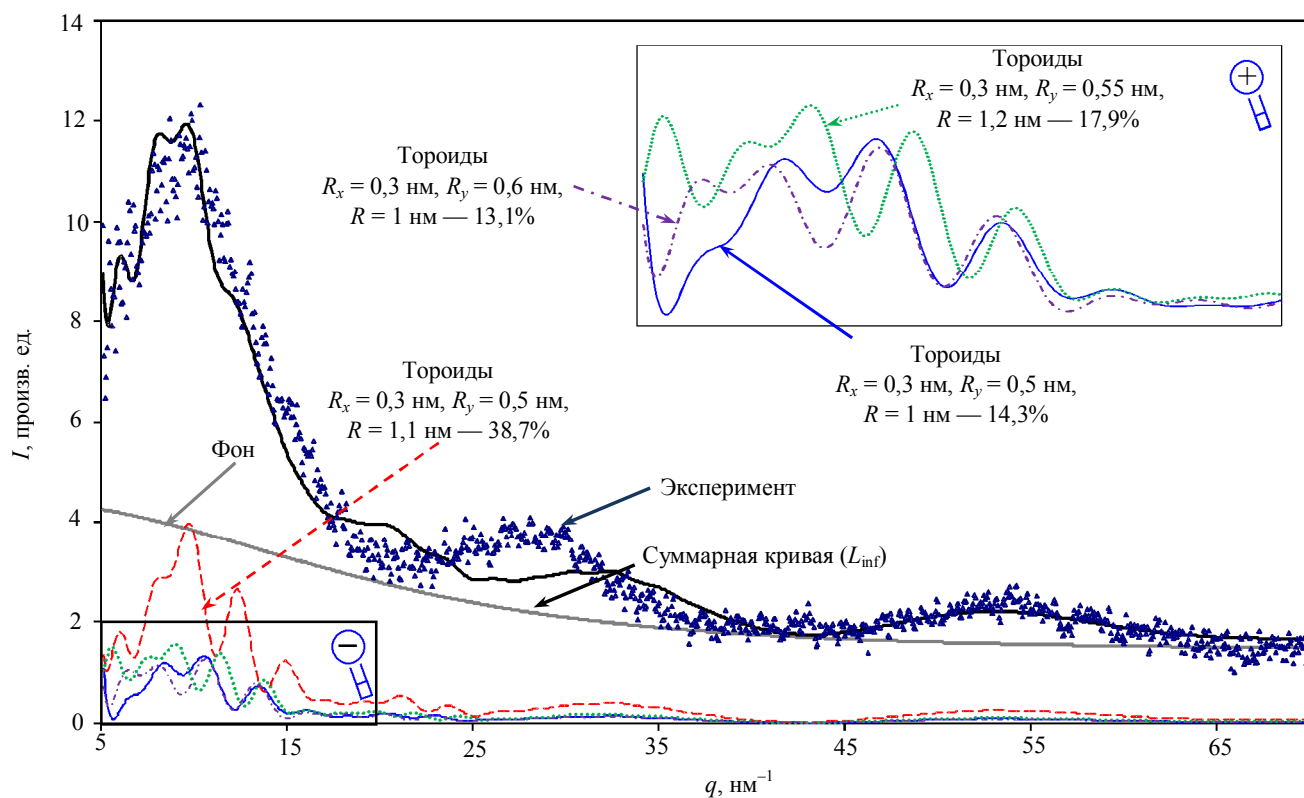


Рис. 20. Сравнение модельной кривой, полученной минимизацией максимального по модулю отклонения, с экспериментом. Указаны наиболее значительные парциальные вклады отдельных наноструктур, а также фона в виде $0,09 f_C^2 + 1,27$

Т а б л и ц а 2. Сравнение характеристик наноструктур, имеющих по результатам оптимизации с учетом фона ненулевые вероятности атома принадлежать данной структуре, для трех различных критериев оптимизации

Число атомов	Топология	R_x , нм	R_y , нм	R , нм	L_1 , %	L_2 , %	L_{inf} , %
631	Тороид	0,3	0,5	1	19,6	16,5	14,3
637		0,3	0,55	0,95	0	14,9	0
639		0,3	0,6	0,9	4,6	0	0
671		0,3	0,55	1	0	9	0
675		0,3	0,6	0,95	19,8	0	0
694		0,3	0,5	1,1	50,5	51,3	39,7
704		0,3	0,55	1,05	0	0	6
710		0,3	0,6	1	0	0	13,1
757		0,3	0,5	1,2	4,6	0	0
771		0,3	0,55	1,15	0	0	10
805		0,3	0,55	1,2	0	0	16,9
900		0,3	0,65	1,2	0	8,3	0
907		0,3	0,7	1,15	0,9	0	0

Из сопоставления рис. 13—16 с рис. 17—20 видно, что включение фона в процедуру оптимизации привело к улучшению результатов. Оптимальные значения критериев изменились следующим образом:

- минимальная сумма абсолютных отклонений уменьшилась на 31%;
- минимальная сумма квадратов отклонений уменьшилась на 58%;
- минимальное значение наибольшего абсолютного отклонения уменьшилось на 19%.

ВЫВОДЫ

Результаты проведенного нами численного моделирования кривых рентгеновского рассеяния на случайных ансамблях углеродных наноструктур различной топологии (трубок, сфер, эллипсоидов и тороидов) в широком диапазоне их геометрических параметров и результаты интерпретации данных по рентгеновскому рассеянию на плёнках, осаждённых внутри вакуумной камеры токамака Т-10, проведенному на синхротронном источнике в РНЦ «Курчатовский институт», позволяют сделать следующие выводы.

Определенный успех предложенной нами модели в аппроксимации наблюдаемой кривой, а именно успех в аппроксимации сильного широкого пика на $q \sim 10 \text{ нм}^{-1}$ и формы кривой интенсивности рассеяния в «графеновой» области ($q \sim 35\text{—}60 \text{ нм}^{-1}$), показывает, что:

- необычный пик может быть обусловлен наноструктурами, состоящими из неплоских однослойных листов графена;
- наиболее вероятным кандидатом, ответственным за этот пик, оказываются тороиды (небольшие тороидальные углеродные нанотрубки с радиусом тора $\sim 1 \text{ нм}$).

Возможное преобладание нанотороидов над другими формами углеродных наноструктур на качественном уровне согласуется со следующими наблюдениями и гипотезами о составе наноструктур, образующихся при импульсном воздействии лазера на углеродные мишени (такие условия могут быть близки к условиям импульсных электродинамических нагрузок на внутреннюю поверхность вакуумной камеры токамака):

- гипотезой [19] о том, что бездефектные круглые одностенные замкнутые на себя углеродные нанотрубки (т.е. углеродные нанотороиды) являются доминирующим наноразмерным компонентом;
- обнаружением полых торов (тороидов) [20] (правда, заметно больших размеров, радиусом $\sim 50 \text{ нм}$, чем рассмотренные нами).

Предложенная и протестированная нами модель, позволяющая приближенно учитывать вклады в кривые интенсивности рентгеновского рассеяния от графеновой структуры одностенных нанообъектов без точного расчёта расположения атомов в стенке, вполне удовлетворительна для описания вклада ближайших корреляций в расположении атомов на произвольной поверхности, но требует некоторого улучшения за счёт учёта корреляций большего размера. Возможно, последнее является источником улучшения совпадения предлагаемой модели с экспериментом в диапазоне $q \sim 30 \text{ нм}^{-1}$.

Сформулированная нами оптимизационная задача идентификации вероятностей принадлежности элементарного рассеивателя (атома углерода) к наноструктуре определённой топологии и размера оказалась весьма устойчивой к выбору критерия близости расчётной и экспериментальной кривых. Включение фона в процедуру оптимизации привело к улучшению совпадения расчётной и экспериментальной кривых.

Созданный программный код по расчёту дифракционных характеристик широкого круга углеродных наноструктур и предложенные алгоритмы идентификации топологического состава внутри заданного класса наноструктур могут использоваться в автоматизированных системах обработки результатов рентгеновской дифрактометрии и соответствующей диагностики наноматериалов с помощью современных вычислительных средств, на принципах параллельных (для расчёта вкладов наноструктур различной топологии и размера) и распределённых (для решения оптимизационных задач идентификации) вычислений.

Настоящая работа поддержана РФФИ (проект 09-07-00469) и Европейским проектом EGEE-III (Enabling Grids for E-sciencE — «Развёртывание Гридov для развития вычислительноёмкой науки»). Часть численных расчётов выполнена на вычислительном кластере в РНЦ «Курчатовский институт».

Авторы благодарны Б.Н. Колбасову за иницирующую роль в работах по исследованию пылевых осадков в токамаке и полезные обсуждения, Л.Н. Химченко — за предоставление плёночных образцов из токамака Т-10.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кукушкин А.Б., Ранцев-Картинov В.А. Микропылевые каркасные структуры в электрических разрядах как новый тип наноматериала. — Микросистемная техника, 2002, вып. 3, с. 22—30.
2. Колбасов Б.Н., Кукушкин А.Б., Ранцев-Картинov В.А., Романов П.В. Новый наноматериал. — Наука в России, 2005, № 1, с. 55—59.
3. Kolbasov B.N., Kukushkin A.B., Rantsev-Kartinov V.A., Romanov P.V. Similarity of micro- and macrotubules in tokamak dust and plasma. — Phys. Lett. A, 2000, vol. 269, p. 363—367.
4. Kolbasov B.N., Kukushkin A.B., Rantsev-Kartinov V.A., Romanov P.V. Skeletal dendritic structure of dust microparticles and of their agglomerates in tokamak T-10. — Phys. Lett. A, 2001, vol. 291, p. 447—452.
5. Kolbasov B.N., Kukushkin A.B., Rantsev-Kartinov V.A., Romanov P.V. Tubular structures in various dust deposits in tokamak T-10. — Plasma Devices and Operations, 2001, vol. 8, p. 257—268.
6. Kolbasov B.N., Biryukov A.Yu., Davydov D.A. et al. — Fusion Eng. Des., 2001, vol. 54, p. 451—464.
7. Svechnikov N.Yu., Stankevich V.G., Lebedev A.M., Menshikov K.A., Kolbasov B.N., Guseva M.I., Khimchenko L.N., Rajarathnam D., Kostetsky Yu.Yu. Temperature and spectroscopic characteristics of homogeneous co-deposited carbon/deuterium films produced in the T-10 tokamak. — Plasma Devices and Operations, 2006, vol. 14, № 2, p. 137—157.
8. Svechnikov N.Yu., Stankevich V.G., Lebedev A.M., Men'shikov K.A., Kolbasov B.N., Kriventsov V.V. Spectroscopy of smooth deuterated carbon films redeposited from plasma discharge in the tokamak T-10. — Crystallography Reports, 2006, vol. 51, Suppl. 1, p. S158—S162; Pleiades Publishing Inc. dx.doi.org/10.1134/S1063774506070236 or <http://www.springerlink.com/content/pq3w>.
9. Stankevich V.G., Svechnikov N.Yu., Zubavichus Ya.V., Veligzhanin A.A., Sukhanov L.P., Menshikov K.A., Lebedev A.M., Kolbasov B.N., Vukolov K.Yu., Rajarathnam D., Khimchenko L.N. Study of hydrocarbon flakes redeposited from T-10 tokamak deuterium plasma discharges. — In: 17th Intern. Colloquium on Plasma Processes. Marseille, France, June 22—26, 2009. www.vide.org/cip2009.html CIP-2009, Abstract booklet. Edit. SFV, 2009, p. 53.
10. Svechnikov N.Yu., Stankevich V.G., Zubavichus Ya.V. et al. — J. of Surface Investigation. X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, 2009, vol. 3, № 3, p. 420—428.
11. Смирнов В.П., Ковальчук М.В., Койдан В.С., Крауз В.И., Мартыненко Ю.В., Молдавер В.А., Обрезков О.И., Станкевич В.Г., Химченко Л.Н. Проблемы наноструктур в управляемом термоядерном синтезе. — В сб.: XIII Национальная конф. по росту кристаллов. ИК РАН, Москва, 17—22 ноября 2008.
12. Вайнштейн Б.К. Рентгеноструктурный анализ глобулярных белков. — УФН, 1966, т. 88, № 3.
13. Amelinckx S., Lucas A., Lambin P. Electron diffraction and microscopy of nanotubes. — Rep. Prog. Phys., 1999, vol. 62, p. 1471—1524.
14. Jie Han. Toroidal Single Wall Carbon Nanotubes in Fullerene Crop Circles. NASA Technical Report 97-015, 1997. <http://marsoweb.arc.nasa.gov/News/Techreports/1997/PDF/nas-97-015.pdf>.
15. Jie Han. — Chem. Phys. Lett., 1998, vol. 282, p. 187—191.
16. Satoshi Itoh, Sigeo Ihara. Isomers of toroidal forms of graphitic carbon. — Phys. Rev. B, 1994, vol. 49, № 19, p. 13970—13974. <http://www.cochem2.tutkie.tut.ac.jp/Fuller/higher/higherE.html>.
17. Gerchikov L.G., Efimov P.V., Mikoushkin V.M., Solov'yov A.V. Diffraction of Fast Electrons on the Fullerene C60 Molecule. — Phys. Rev. Lett., 1998, vol. 81, № 13, p. 2707—2710.
18. Liu J., Dai H., Hafner J.H., Colbert D.T., Tans S.J., Dekker C., Smalley R.E. — Nature, 1997, vol. 385, p. 780.
19. Lyn M.E., He J., Koplitz B. Laser-induced production of large carbon-based toroids. — Appl. Surf. Sci., 2005, vol. 246, p. 44.

Статья поступила в редакцию 20 октября 2009 г.

Вопросы атомной науки и техники.

Сер. Термоядерный синтез, 2010, вып. 1, с. 7—21.