

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ
КИЇВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ ІМЕНІ ТАРАСА
ШЕВЧЕНКА
НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ МЕТАЛОФІЗИКИ ІМ. Г. В. КУРДЮМОВА НАН УКРАЇНИ

кваліфікаційна наукова
робота на правах рукопису

АЛЬ-ОМАРІ МОХАММАД АБДУЛЛА МОХАММАД

ДИСЕРТАЦІЯ

**ОСОБЛИВОСТІ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО
ВИПРОМІНЕННЯ ТА ІОНІЗАЦІЇ АТОМІВ ПРИ РОЗПОВСЮДЖЕННІ
ВИСОКОЕНЕРГЕТИЧНИХ ЕЛЕКТРОНІВ У КРИСТАЛАХ**

Спеціальність: 01.04.07 – фізика твердого тіла

Подається на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело

_____ М.АМ. Аль-Омарі

Науковий керівник: Боровий Микола Олександрович,
доктор фізико-математичних наук, професор

Київ – 2018

АНОТАЦІЯ

Аль-Омарі М.АМ. Особливості параметричного рентгенівського випромінювання та іонізації атомів при розповсюдженні високоенергетичних електронів у кристалах - рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук (доктора філософії) за спеціальністю 01.04.07 – «Фізика твердого тіла». – Інститут металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України, Київ, 2018.

Дисертація присвячена дослідженню процесів взаємодії високоенергетичних електронів з речовиною, а саме параметричного рентгенівського випромінювання та кратної іонізації атомів у кристалах. Результати дисертаційної роботи отримані експериментально та доповнені теоретичними розрахунками разом з математичним моделюванням.

Для виконання досліджень спектрально-кутових характеристик параметричного рентгенівського випромінювання (ПРВ) при розповсюдженні високоенергетичних електронів з енергією 7 МеВ у кристалах на базі експериментальної установки «Рентген 1» розроблено та відпрацьовано методику збудження та реєстрації ПРВ у геометрії зворотнього розсіювання, зокрема, в області кутів спостереження 150° – 180° відносно напрямку розповсюдження електронного пучка. Це дозволило забезпечити рівень сигналу на рівні 1–3% від рівня загального радіаційного фону, що достатньо для достовірної реєстрації спектрів ПРВ при відповідному виборі часу накопичення у каналі реєстрації. Для збільшення інтенсивності ПРВ теоретично передбачено можливість звуження конусу ПРВ та зростання кутової густини ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів у тонких кристалах в області малих кутів ковзання електронного пучка відносно поверхні мішені.

Експериментально визначено спектрально-кутові розподіли інтенсивності ПРВ при розповсюдженні високоенергетичних електронів у монокристалічному кремнії та високоорієнтованому піролітичному графіті (ВОПГ) для геометрії реєстрації у задній напівсфері. Виявлено, що кутові орієнтаційні залежності інтенсивності максимумів (220) Si та (002) ВОПГ містять два симетричних максимуми, які відображують переріз конусу ПРВ перпендикулярною до осі конусу площиною.

Експериментально показано, що при розповсюдженні пучка високоенергетичних електронів у порошкових зразках алмазу з розмірами кристалітів $d = 0,3\text{--}42$ мкм при реєстрації у задній напівсфері ($\theta = 151^\circ$) відношення інтенсивностей максимумів ПРВ (111) та (220) зменшується при зростанні розміру кристалітів алмазу. Зокрема, при переході від частинок з $d = 0,3$ мкм до частинок з $d = 6$ мкм таке зменшення складає 1,9 рази.

За умови збудження $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr електронним пучком (25 кеВ) експериментально встановлено зменшення відносної інтенсивності $\chi = I(^3P)/I(^1P)$ при переході від металів до відповідних оксидів у 1,6–1,9 рази. Показано, що в оксидах ванадію у ряду $V_2O_3 - VO_2 - V_2O_5$ зростання ефективного позитивного заряду атому V супроводжується монотонним зменшенням відносної інтенсивності χ від 2,4 до 1,8. Запропоновано модель ефекту зменшення відносної інтенсивності $I(^3P)/I(^1P)$ у $K\alpha L^1$ спектрах, яка враховує тільки міжканальну взаємодію континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, а вплив локалізації валентних електронів у кристалах враховується введенням ефективного радіусу взаємодії ежектованого $2p$ електрона з двократно $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом.

При збудженні $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al електронами у діапазоні енергій 4,5–100 кеВ експериментально визначено імовірності утворення двох (P_2) та трьох (P_3) додаткових $2p$ вакансій при іонізації $1s$ оболонки. Порівняння вказаних величин зі значеннями, обчисленими у моделі незалежного викиду $2p$ електронів за рахунок (*shake-off*) SO процесу,

виявило, що для металу Al величина $P_2/P_2^{(SO)}$ у 1,2 разів менша, а величина $P_3/P_3^{(SO)}$ у 1,7 разів менша, ніж для напівпровідника кремнію.

Ключові слова: релятивістський електрон, параметричне рентгенівське випромінювання, характеристичне рентгенівське випромінювання, конус параметричного рентгенівського випромінювання, діелектрична сприйнятливність речовини, кратна іонізація атому, ефективний заряд, рентгенівські сателіти, екранування, конфігураційна взаємодія.

ABSTRACT

Al-Omari M.AM. The features of parametric X-ray radiation and ionization of atoms at the propagation of high-energy electrons in crystals. - Manuscript.

Thesis for the degree of a candidate of physical and mathematical sciences (Doctor of Philosophy), specialty 01.04.07 – ‘Physics of Solid State’. G. V. Kurdyumov Institute for Metal Physics, NAS of Ukraine, Kiev, 2018.

This thesis devoted to study of the processes of the interaction of high-energy electrons with matter, namely parametric X-ray radiation and ionization processes in crystals. The results of the work were obtained theoretically and experimentally and supplemented with calculations.

For studying the spectral-angular characteristics of parametric X-ray radiation (PXR) with the propagation of high-energy electrons with energy of 7 MeV in crystals based on the experimental setup «Röntgen- 1», the method of excitation and registration of PXR in the geometry of reverse scattering, in particular in the field of observation angles, was developed and worked out. 150° – 180° relative to the direction of propagation of the electron beam. This allowed to provide a higher signal level of 1–3% of the total radiation background level, which is sufficient for reliable registration of the PXR spectra, with the appropriate choice of

accumulation time in the registration channel. In order to increase the intensity of PXR, it is theoretically provided for the possibility of narrowing the PXR cone and the increase in the angular density of PXR in the propagation of relativistic electrons in thin crystals in the region of small angles of slipping the electron beam relative to the target's surface.

The spectral-angular distributions of the PXR intensity were experimentally determined by the propagation of high-energy electrons in monocrystalline silicon and high-oriented pyrolytic graphite (HOPG) in the geometry of the backward registration. It was found that the angular orientation of the intensity of the maxima (220) Si and (002) HOPG contains two symmetric maxima, which represent the cross section of the cone of the PXR perpendicular to the axis of the cone plane.

It has been experimentally shown that when propagation of a beam of high-energy electrons in powder samples of a diamond with crystallite sizes $d = 0.3\text{--}42\text{ }\mu\text{m}$, at the backward of registration ($\theta = 151^\circ$) the ratio of the intensities of the PXR (111) and (220) maxima decreases with increasing diameters of diamond crystallites. In particular, in the transition from particles with a diameter $d = 0.3$ microns to particles $d = 6$ microns, this reduction is 1.9 times.

Under the condition of excitation $K\alpha L^1$ spectra of the Ti, V, and Cr by electron beams (25 keV), experimentally established that the decrease in the relative intensity of the $\chi = I(^3P)/I(^1P)$ due to the transition from metals to the corresponding oxides, it is in the 1.6–2.9 times. It is shown that in the vanadium oxides in the $V_2O_3 - VO_2 - V_2O_5$ series, the growth of an effective positive charge of the atom V is accompanied by a monotonous decrease in relative intensity χ from 2.4 to 1.8. And also offered a model of the effect of reducing the relative intensity in the $I(^3P)/I(^1P)$ in $K\alpha L^1$ spectra, which takes into account only the intercontinental interaction of the continents $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ and $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, is proposed, and the influence of the localization of valence electrons in crystals is taken into account by the introduction of an effective interaction radius of the ejected $2p$ electron with a double $1s^{-1}2p^{-1}$ ionized atom.

At the excitation of $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ and $K\alpha L^3$, spectra Al by electrons in the energy range 4.5–100 keV experimentally determined the probability of formation of two (P_2) and three (P_3) additional $2p$ vacancies in ionization of $1s$ shell. Comparison of these values with the values calculated in the model of independent emission of $2p$ electrons due to the (*shake-off*) SO process, it show that for the metal Al compering with the semiconductor of silicon the magnitude $P_2/P_2^{(SO)}$ is 1.2 times less and the magnitude $P_3/P_3^{(SO)}$ is 1.7 times less, respectively.

Key words: relativistic electron, parametric X-ray radiation, characteristic X-ray radiation, photon energy, dielectric susceptibility of matter, multyionization of atom, effective charge, X-ray satellites, electronic screening, configuration interaction.

Список публікацій за темою дисертації

I. Праці, у яких опубліковані основні наукові результати дисертації

1. Al-Omari M.AM. The generation features of parametric X-ray radiation in micro sized diamond powders / M.AM. Al-Omari and N.A. Borovoy // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. – 2017. – № 4. – С. 171–174.
2. Аль-Омарі М.АМ. Вплив зарядового стану атома на інтенсивність рентгенівської $K\alpha L^1$ -емісії Ti та Cr / М.АМ. Аль-Омарі, М. О. Боровий // Металлофиз. новейшие технол. – 2018. – т. 40.– № 3. – р. 301-310.
3. Al-Omari M.A.M. The $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ and $K\alpha L^3$ X-ray emission of aluminium under electron impact / M.A.M. Al-Omari and N.A. Borovyi // Металлофиз. новейшие технол. – 2018. –т. 40. – № 5. – р. 585-592.
4. Алексеев В.И. Исследование механизмов генерации рентгеновского излучения при взаимодействии релятивистских электронов с веществом на установке “РЕНТГЕН 1” / В.И. Алексеев, В.А. Астапенко, А.Н. Елисеев, Э.Ф. Иррибарра, В.А. Карпов, И.А. Кишин, Ю.А. Кротов, А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмудинов, М.АМ. Аль-Омарі, С.В. Сахно // Journal of

Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques. – 2017. – т. 11. – № 4 – р. 13–18.

5. Кишин И. А. Эффект трансформации конуса излучения Вавилова–Черенкова при влёте релятивистского электрона в слой вещества / И. А. Кишин, А. С. Кубанкин, Т. Б. Никуличева, М.АМ. Аль-Омари, А. В. Сотников, А. С. Старовойтов // Ядерная физика и инжиниринг.– 2016. – т. 7. – № 1. – р. 47–52.

II. Праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації

6. Alexeyev V.I. Parametric X-ray radiation in the backward geometry under interaction of relativistic electrons with crystals / V.I. Alexeyev, A.N. Eliseyev, E. Irribarra, V.A. Karpov, I.A. Kishin, A.S. Kubankin, R.M. Nazhmudinov, M. AM. Al-Omari // The 7th International Conference – Channeling 2016, Charged & Neutral Particles Channeling Phenomena, Capri (Naples) SIRMIONE-DESENZANO DEL GARDA (Italy), September 25–30, 2016.

7. Alexeyev V.I. Parametric X-ray radiation from powders with different grain size / V.I. Alexeyev, V. V. Astapenko, A.N. Eliseyev, E. Irribarra, V.A. Karpov, I.A. Kishin, Yu. Krotov, A.S. Kubankin, R.M. Nazhmudinov, M. AM. Al-Omari, S. Sakhno // The 7th International Conference – Channeling 2016, Charged & Neutral Particles Channeling Phenomena. Capri (Naples) SIRMIONE-DESENZANO DEL GARDA (Italy), September 25–30, 2016.

8. Кубанкин А.С. Источник вакуумного ультрафиолета и мягкого рентгена на основе взаимодействия пучка быстрых электронов с плоской мишенью в скользящей геометрии / А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмудинов, В.И. Сергиенко, М.АМ. Аль-Омари, Х. Нгуен, Т. Фам, И.А. Кишин // Тезисы докладов XLV международной Тулиновской конференции по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, Москва, 26 – 28 мая 2015. – С. 53.

9. Кищин И. А. Параметрическое рентгеновское излучение релятивистских электронов в области аномальной дисперсии / И. А. Кищин, В.И. Алексеев, А. Н. Елисеев, Э. Иррибарра, А.С. Ключев, А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмудинов, М. АМ. Аль-Омари // Сборник тезисов 22 Всероссийской научной конференции студентов физиков и молодых ученых, Ростов-на-Дону, 21-28 апреля 2016 г.

10. Алексеев В.И. Параметрическое рентгеновское излучение релятивистских электронов в области аномальной дифракции / В.И. Алексеев, А.Н. Елисеев, Э. Иррибарра, И.А. Кищин, А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмудинов, И.С. Никулин, М.АМ. Аль-Омари // Сборник тезисов XLV международной Тулиновской конференции по Физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, г. Москва, 31 мая – 2 июня 2016. – С. 52.

11. Al-Omari M.AM. The Double-Electron $KL^{2,3}$ ionization of Silicon Atoms at the electron impact near-threshold / M.AM. Al-Omari and N.A. Borovoy // Book of Abstracts, Eighteenth International Young Scientists Conference Devoted to 95th Anniversary of Professor M. U. Bilyi Optics & High Technology Material Science, SPO-2017, 37 - Section A PHYSICS OF CONDENSED MATTER AND SPECTROSCOPY AP.57. Kyiv, Ukraine, October 26–29, 2017. – P. 142.

ЗМІСТ

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ СКОРОЧЕНЬ І ПОЗНАЧЕНЬ	11
ВСТУП	12
РОЗДІЛ 1. ХАРАКТЕРИСТИКИ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЕННЯ І ПРОЦЕСІВ КРАТНОЇ ІОНІЗАЦІЇ АТОМІВ ПРИ ПРОХОДЖЕННІ ВИСКОЕНЕРГІЧНИХ ЕЛЕКТРОНІВ У КРИСТАЛАХ	
1.1. Природа та загальні властивості параметричного рентгенівського випромінення	20
1.1.1. Генерація і розсіювання ПРВ при розповсюдженні заряджених частинок у кристалах	22
1.1.2. Особливості експериментальних методів збудження та реєстрації ПРВ	29
1.2. Двократна $1s^{-1}2p^{-1}$ та трикратна $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізація атомів при розповсюдженні нерелятивістських електронів у кристалах	37
1.2.1. Перерізи однократної іонізації електронних оболонок атомів при електронному бомбардуванні	38
1.2.2. Структура $K\alpha L^1$ та $K\alpha L^2$ спектрів атомів елементів $10 \leq Z \leq 30$	39
1.2.3. Механізми двоелектронної $1s^{-1}2p^{-1}$ та триелектронної $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації атомів	46
Висновки розділу 1	50
РОЗДІЛ 2. МЕТОДИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО ДОСЛІДЖЕННЯ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЕННЯ ТА РЕНТГЕНІВСЬКИХ ЕМІСІЙНИХ СПЕКТРІВ КРАТНОІОНІЗОВАНИХ АТОМІВ	
2.1. Принцип функціонування та блок-схема експериментальної установки «Рентген 1»	53
2.2. Методика проведення експерименту зі збудження та реєстрації ПРВ ...	67
2.3. Методика збудження та реєстрації характеристичних рентгенівських	

$K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$ спектрів елементів $13 \leq Z \leq 24$ при електронному бомбардуванні	70
Висновки розділу 2	72
 РОЗДІЛ 3. СПЕКТРАЛЬНО-КУТОВІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЕННЯ У КРИСТАЛАХ ПРИ РІЗНИХ УМОВАХ ГЕНЕРАЦІЇ ТА ДИФРАКЦІЇ.....	
73	73
3.1. Особливості генерації параметричного рентгенівського випромінення при розповсюдженні релятивістських електронів у тонкому шарі речовини	73
3.1.1. Розрахунок амплітуди параметричного рентгенівського випромінення у тонкому зразку	74
3.1.2. Параметри конусу параметричного рентгенівського випромінення у тонкому зразку	78
3.2. Характеристики параметричного рентгенівського випромінення при розповсюдженні релятивістських електронів у порошках мікророзмірних частинок алмазу	81
3.3. Орієнтаційні залежності виходу ПРВ у монокристалічному кремнії та високоорієнтованому піролітичному графіту у геометрії зворотної реєстрації	89
Висновки розділу 3	99
 РОЗДІЛ 4. ОСОБЛИВОСТІ КРАТНОЇ ІОНІЗАЦІЇ АТОМІВ 3p та 3d МЕТАЛІВ ПРИ РОЗПОВСЮДЖЕННІ НЕРЕЛЯТИВІСТСЬКИХ ЕЛЕКТРОНІВ У КРИСТАЛАХ	
101	101
4.1. Характеристики рентгенівських емісійних спектрів Ti, V, Cr у металах та оксидах при електронному бомбардуванні	102
4.2. Характеристики $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al при електронному бомбардуванні	113
Висновки розділу 4	122
ВИСНОВКИ	124
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	127

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ СКОРОЧЕНЬ І ПОЗНАЧЕНЬ

ПРВ (PXR) – параметричне рентгенівське випромінювання.

ПВ – перехідне випромінювання.

ДПВ (XRD) –діфрагрованне перехідне випромінювання.

ДРВТ – діфрагрованне рентгенівське випромінювання трубки.

ХРВ – характеристичне рентгенівське випромінювання.

γ – Лоренц–фактор випромінює електрона.

\vec{g} – вектор оберненої ґратки.

\vec{V} – вектор швидкості випромінює електрона,

ω – енергія фотона.

$\varepsilon = \varepsilon(\omega)$ – діелектрична проникність середовища

$\chi_o(\omega)$ – діелектрична сприйнятливість речовини.

m_e – Маса електрона.

ESC–пик – апаратний пик (пик вильоту).

SO – shake–off, викид електрона при струшуванні атома

ВСТУП

Актуальність теми

Взаємодія заряджених частинок з кристалами є одним з актуальних напрямів досліджень у фізиці твердого тіла, оскільки сприяє як розвитку нових методів варіювання фізичних характеристик функціональних матеріалів різних типів, так і вирішенню ряду фундаментальних питань щодо впливу бомбардуючих частинок на структурні, механічні та електрофізичні параметри твердих тіл. Одним з важливих проявів такої взаємодії є параметричне рентгенівське випромінювання (ПРВ), яке генерується у середовищах з упорядкованою або частково упорядкованою структурою, наприклад, у монокристалах та полікристалах, і розглядається як результат дифракції віртуальних фотонів, що породжуються електричним полем релятивістської зарядженої частинки, на періодичній атомній структурі. Властивості такого випромінювання визначаються, з одного боку, структурно-морфологічними характеристиками середовища, а з іншого, власне характеристиками заряджених частинок (енергія і заряд), що налітають. Зокрема, дослідження властивостей ПРВ при проходженні релятивістських електронів у кристалах може розглядатися як потенційно інформативна методика діагностики атомно-просторової структури речовини, що визначається високою просторовою роздільною здатністю вимірювань рефлексів ПРВ при використанні магнітооптичних систем для фокусування пучка електронів, можливістю варіювання енергії фотонів ПРВ вибором відповідної геометрії експерименту, а також можливістю отримувати інформацію про структуру мішені з глибини, яка суттєво перевищує товщину шару, що може бути досліджений методом рентгеноструктурного аналізу. Інший аспект взаємодії високоенергетичних електронів з атомами твердого тіла пов'язаний з іонізацією внутрішніх електронних оболонок атомів, як однократною, так багатократною, за рахунок автоіонізаційних процесів. Визначення характеристик таких процесів та з'ясування їх механізмів є

необхідним для розробки нових та удосконалення існуючих методів визначення радіаційної стійкості твердих тіл та дефектоутворення в них при опроміненні високоенергетичними електронами. Тому актуальним є дослідження закономірностей генерації та дифракції ПРВ у моно- та полікристалах при розповсюдженні високоенергетичних електронів, а також визначення особливостей процесів кратної $1s^{-1}2p^{-n}$ ($n=1-3$) іонізації внутрішніх електронних оболонок атомів $3p$ та $3d$ металів високоенергетичними електронами.

Зв'язок дисертаційної роботи з науковими програмами, планами, темами

Дослідження, представлені у дисертаційній роботі, виконувалися в рамках тематики науково-дослідної лабораторії «Фізичне матеріалознавство твердого тіла» кафедри загальної фізики фізичного факультету Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Зокрема, автор брав участь у науково-дослідницьких роботах по темі «Формування та фізичні властивості наноструктурованих композитних матеріалів і функціональних поверхневих шарів на основі карбону, напівпровідникових і діелектричних складових» № 16БФ051-01, № державної реєстрації 0108U008563. Крім того, робота виконувалася за підтримки Міністерства науки і освіти Російської Федерації, проект № 14.578.21.0063 (RFMEFI57814X0063), фінансової підтримки РФФД (грант № 16-32-00502 мол_а), а також отримала підтримку за Програмою Міністерства освіти і науки Російської Федерації для вищих навчальних закладів, проект № 3.2009.2014/К.

Мета і задачі дослідження

Мета роботи — визначити закономірності генерації та дифракції параметричного рентгенівського випромінення у монокристалах та порошкових зразках у геометрії зворотної реєстрації при розповсюдженні релятивістських електронів; визначити закономірності та механізми кратної $1s^{-1}2p^{-n}$ ($n=1-3$) іонізації внутрішніх електронних оболонок атомів $3p$ та $3d$ металів високоенергетичними нерелятивістськими електронами.

Основні завдання, які необхідно було розв'язати для досягнення мети

дисертаційної роботи:

1. Розробити експериментальну методику визначення спектрально-кутових характеристик ПРВ у геометрії зворотного розсіювання при розповсюдженні високоенергетичних електронів з енергією 7 MeV у кристалах на базі експериментального комплексу «Рентген 1».

2. Розробити теоретичну модель трансформації конусу ПРВ у тонких кристалах в області малих кутів ковзання високоенергетичних електронів.

3. Експериментально визначити спектрально-кутові розподіли інтенсивності ПРВ та енергії фотонів ПРВ у геометрії зворотного розсіювання при розповсюдженні релятивістських електронів у монокристалах Si, високоорієнтованому піролітичному графіті (ВОПГ) та порошкових зразках алмазу. За орієнтаційними залежностями інтенсивності ПРВ визначити вплив структурних характеристик кристалів на параметри конусу ПРВ.

4. Для різних кристалографічних площин алмазу у геометрії зворотного розсіювання експериментально з'ясувати залежність інтенсивності ПРВ від розміру зерен у порошкових зразках алмазу. Порівняти її з такою при дифракції характеристичного рентгенівського випромінення (ДХРВ).

5. За умов електронного бомбардування експериментально визначити характеристики спектральних компонентів групи $K\alpha L^1$ ліній $3d$ елементів Ti, V, Cr у металах та їх оксидах. З'ясувати механізм впливу електронів провідності у металах на процеси кратної $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізації внутрішніх електронних оболонок атомів Ti, V, Cr.

6. Виконати дослідження відносних інтенсивностей груп ліній $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ у $3p$ металі Al при іонізації електронами з енергіями 5–100 keV та визначити механізми кратної $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації атомів у металі Al.

Об'єкт дослідження — процеси генерації та дифракції параметричного рентгенівського випромінення, а також кратної іонізації атомів при розповсюдженні високоенергетичних електронів у кристалах.

Предмет дослідження — особливості параметричного рентгенівського випромінення у моно- та полікристалах, а також кратної $1s^{-1}2p^{-n}$ ($n=1-3$) іонізації атомів $3p$ та $3d$ металів при розповсюдженні високоенергетичних електронів.

Методи дослідження

1. Спектроскопія ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів (7 MeV) у кристалах (експериментальний комплекс «Рентген 1»).

2. Рентгенівська емісійна спектроскопія кратноіонізованих атомів при розповсюдженні високоенергетичних нерелятивістських електронів 5–100 keV у кристалах.

3. Моделювання процесів кратної $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізації внутрішніх електронних оболонок атомів металів квантово-механічним методом взаємодії конфігурацій.

Наукова новизна одержаних результатів полягає у наступному:

- теоретично показано, що при розповсюдженні релятивістських електронів у тонких (десятки–сотні нанометрів) кристалах в області малих кутів ковзання має спостерігатися звуження кутового розхилу конусу параметричного рентгенівського випромінення та, відповідно, зростання кутової густини параметричного рентгенівського випромінення;
- виявлено, що при розповсюдженні релятивістських електронів (7 MeV) у монокристалах Si та у ВОПГ у геометрії зворотної реєстрації ($\theta = 180^\circ$) спостерігаються чіткі спектри параметричного рентгенівського випромінення, що містять максимуми (220), (440), (660) — Si, а також максимуми (002), (004), (006), (008) — ВОПГ, енергії яких з точністю до 0,5% збігаються зі значеннями, обчисленими у кінематичному наближенні;
- встановлено, що експериментально визначені значення повного кутового розхилу конусів параметричного рентгенівського випромінення у монокристалах Si та ВОПГ відповідно на $2,8^\circ$ та $1,5^\circ$ менші, ніж передбачувані у кінематичному наближенні. Розбіжність може бути зумовлена ефектами динамічної дифракції, які проявляються при зростанні

структурної досконалості кристалів;

- показано, що при розповсюдженні релятивістських електронів (7 MeV) у порошкових зразках алмазу з розмірами зерен $d = 0,3\text{--}42$ мкм відношення інтенсивностей максимумів параметричного рентгенівського випромінення (111) та (220) зменшується при зростанні діаметру зерен алмазу, причому при переході від частинок з $d = 0,3$ мкм до частинок з $d = 6$ мкм має місце зменшення у 1,9 рази. Така залежність визначається ефектами первинної екстинкції при дифракції параметричного рентгенівського випромінення у блоках когерентного розсіювання кінцевих розмірів;
- виявлено, що за умови збудження $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr високоенергетичними електронами (25 кеВ) спостерігається зменшення відносної інтенсивності $I(^3P)/I(^1P)$ у 1,6–1,9 рази при переході від металів Ti, V та Cr до відповідних оксидів. Запропоновано модель ефекту, що враховує тільки міжканальну взаємодію континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, величина якої визначається ефективним радіусом взаємодії електрона з двократно $1s^{-1}2p^{-1}$ -іонізованим атомом;
- встановлено, що при збудженні $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al електронами у діапазоні енергій (4,5–100) кеВ імовірності утворення двох та трьох додаткових $2p$ вакансій у порівнянні зі значеннями, обчисленими у «shake-off» моделі, відповідно у 1,2 та 1,7 разів менші, ніж для напівпровідника кремнію. Таке зменшення свідчить про значну роль екранування вільними електронами взаємодії електронних конфігурацій $1s^{-1}2p^{-2}(^M X_J) 2\epsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації та конфігурацій $1s^{-1}2p^{-3}(^M \tilde{X}_J) 3\epsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації у металі (Al) порівняно з екрануванням такої взаємодії локалізованими валентними електронами у Si.

Практичне значення одержаних результатів

Результати дисертаційної роботи сприяють вирішенню важливої наукової проблеми, яка полягає у визначенні фізичних закономірностей процесів генерації та дифракції ПРВ, а також кратної іонізації атомів у

твердих тілах при розповсюдженні високоенергетичних (релятивістських та нерелятивістських) електронів. Вони розширюють уявлення про вплив розмірів та структурної досконалості кристалів на характеристики ПРВ, а також динамічного екранування міжканальної взаємодії електронних конфігурацій атому вільними електронами, що сприяє розробці нових та удосконаленню існуючих експериментальних методів визначення розмірів кристалітів та оцінки ефективного заряду атому в кристалах.

Особистий внесок здобувача визначається: виконанням комплексу робіт з удосконалення функціональних можливостей основних компонентів реєструючої частини комплексу «Рентген 1», розробки та відпрацювання методики визначення характеристик ПРВ у зворотній геометрії реєстрації; удосконаленням методики отримання характеристичних рентгенівських спектрів $3p$ та $3d$ елементів при збудженні електронами у діапазоні енергій 5–100 кеВ; обробкою експериментальних даних, участю у розробці математичних моделей і проведенні розрахунків для основної частини дисертаційної роботи; участю в обговоренні та інтерпретації експериментальних результатів, написанні наукових статей і тез доповідей.

У роботі [1] автор брав участь у проектуванні і модернізації експериментальної установки «Рентген 1», виконував вимірювання спектрально-кутових залежностей інтенсивності ПРВ у геометрії зворотного розсіювання. Ним виконано обробку результатів експерименту.

У роботі [2] автор брав участь в розробці теоретичної моделі ефекту трансформації конусу ПРВ та виконував розрахунки спектрально-кутових параметрів конусу ПРВ у тонкій мішені.

У роботі [3] автор виконував експериментальні вимірювання спектрально-кутових характеристик ПРВ у порошкових зразках алмазу з різними розмірами кристалів, проводив обробку експериментальних спектрів та розрахунки відносної інтенсивності максимумів ПРВ.

У роботі [4] автором отримано характеристичні рентгенівські $K\alpha L^1$ спектри Ti, V та Cr у металах та оксидах при збудженні електронами (25

keV), виконано обробку спектрів та визначено основні спектральні характеристики групи $K\alpha L^1$ ліній у вказаних зразках. Автор брав участь у розробці теоретичної моделі $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізації та виконував розрахунки в рамках цієї моделі.

У роботі [5] автором отримано характеристичні рентгенівські $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектри Al при збудженні електронами у діапазоні енергій 4,5–100 keV, виконано обробку спектрів та визначено експериментальні характеристики процесів $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації.

Тези [6–11] було підготовлено та написано за участю автора, по ним було зроблено доповіді на шести наукових конференціях.

Апробація результатів дисертації

Матеріали дисертації доповідалися і обговорювалися на наступних наукових конференціях:

1. The 7th International Conference – Channeling 2016, Charged & Neutral Particles Channeling Phenomena, Capri (Naples) SIRMIONE-DESENZANO DEL GARDA (Italy), September 25–30, 2016.

2. XLV международная Тулиновская конференция по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, г. Москва, 26 – 28 мая 2015.

3. 22 Всероссийская научная конференция студентов физиков и молодых учёных, Ростов-на Дону, 21–28 апреля 2016 г.

4. XLV международной Тулиновской конференции по Физике Взаимодействия Заряженных Частиц с кристаллами, г. Москва, 31 мая – 2 июня 2016.

5. Eighteenth International Young Scientists Conference Devoted to 95th Anniversary of Professor M. U. Bilyi Optics & High Technology Material Science, SPO-2017, Kyiv Ukraine, October 26–29, 2017.

Публікації

За матеріалами дисертації опубліковано 11 наукових праць, з яких 5 статей у наукових фахових виданнях (з них 3 — у виданнях, що входять до

наукометричних баз даних Web of Science та/або Scopus) та 6 тез доповідей на конференціях.

Структура та об'єм дисертації

Дисертація складається зі вступу, чотирьох розділів, загальних висновків, списку використаних літературних джерел. Загальний обсяг дисертації становить 142 сторінки, 43 рисунок, 6 таблиць і список літератури із 166 найменувань.

РОЗДІЛ 1. ХАРАКТЕРИСТИКИ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЕННЯ І ПРОЦЕСІВ КРАТНОЇ ІОНІЗАЦІЇ АТОМІВ ПРИ ПРОХОДЖЕННІ ВИСКОЕНЕРГІЧНИХ ЕЛЕКТРОНІВ У КРИСТАЛАХ

1.1. Природа та загальні властивості параметричного рентгенівського випромінювання

Параметричне рентгенівське випромінювання (ПРВ), яке виникає у середовищах з упорядкованою або частково упорядкованою структурою, наприклад, у монокристалах та полікристаллах, розглядається як результат дифракції власного електромагнітного поля зарядженої частинки, що рухається у кристалі, на періодичній атомній структурі (кристалічній ґратці) кристалу [12-15]. Важливо відзначити, що ПРВ спостерігається і у тих випадках, коли об'єкт, на якому відбувається розсіювання електронів пучка, має більш складну структуру, ніж кристалічна ґратка. Наприклад, досліджувалася дифракція високоенергетичних електронів на фулеренах та металевих кластерах [15-17], мезоводороді [18-20], а також на атомних ядрах [21].

При розгляді природи ПРВ необхідно відзначити його певну схожість з черенковським випромінюванням. Як відомо [22-28], випромінювання Вавілова-Черенкова генерується за умови, що заряджена частинка у середовищі рухається з постійною фазовою швидкістю \vec{V} , яка перевищує швидкість світла у цьому середовищі ($|\vec{V}| > c / \sqrt{\epsilon}$, де c – швидкість світла у вакуумі, $\epsilon = \epsilon(\omega)$ – діелектрична проникність середовища). У векторній формі вказана умова набуває вигляду

$$\vec{V} \vec{\Omega} \sqrt{\epsilon} - c \geq 0 \quad (1.1)$$

де $\vec{\Omega}$ – одиничний вектор у напрямку випромінювання.

У роботі [24] вперше було показано, що за умови періодичної зміни діелектричної проникності середовища у напрямку руху зарядженої частинки така частинка випромінює навіть у випадку $|\vec{V}| < c / \sqrt{\epsilon}$. Таке випромінення отримало назву «параметричне черенківське випромінювання». У подальшому було встановлено [24-30], що при рівномірному і прямолінійному русі релятивістської зарядженої частинки в однорідному періодичному середовищі генерується когерентне квазічеренковське випромінювання у рентгенівському діапазоні спектра, яке ефективно дифрагує на кристалографічних площинах середовища, причому умови дифракції визначаються рівнянням Бреггів для відповідних частот генерованого випромінення поблизу бреггівських кутів. Власне, таке квазічеренковське параметричне випромінення у рентгенівському діапазоні і є ПРВ. Відзначимо ряд переваг ПРВ у порівнянні з іншими видами рентгенівського випромінення[24-30]:

1) ПРВ являє собою поляризаційне квазімонохроматичне випромінення у вузькому кутовому та спектральному діапазонах, що робить його схожим на синхротронне випромінення. Однак генерація ПРВ суттєво дешевша, а ніж синхротронного випромінювання;

2) залежність параметрів пучка ПРВ від кристалографічної структури мішені, у якій розповсюджується пучок заряджених частинок, відкриває можливості використання ПРВ у структурному аналізі;

3) глибина проникнення релятивістських заряджених частинок суттєво перевищує глибину шару дифракції зондуючих рентгенівських променів у традиційному рентгеноструктурному аналізі, тому вихід ПРВ відбувається зі значно більш глибоких шарів кристалів;

4) вибором геометрії розповсюдження пучка релятивістських частинок можна суттєво знизити внески супутніх типів випромінювання (гальмівне випромінювання, каналювання тощо);

5) спектр ПРВ складається з піків, енергія яких визначається рівнянням Бреггів при заданому куті спостереження, що надає можливість створювати

джерело когерентного рентгенівського випромінення з контрольованим набором енергій піків спектра – налаштування на те чи інше значення енергії піку ПРВ виконується обертанням кристала;

б) при заданій енергії ПРВ розповсюджується у досить вузькому кутовому конусі (див. далі формула (1.8));

7) характеристики ПРВ визначаються лише енергією і зарядом генеруючої частинки.

1.1.1. Генерація і розсіювання ПРВ при розповсюдженні заряджених частинок у кристалах

Розглянемо більш детально умови генерації ПРВ у кристалах. У роботах [24,31-34] було показано, що при русі зарядженої частинки у періодичному середовищі (діелектрична проникність кристалу періодично змінюється у просторі) можна використати побудову Гюйгенса для визначення фронту вторинних електромагнітних хвиль. Нехай заряджена частинка рухається прямолінійно і рівномірно зі швидкістю $v < c/\sqrt{\varepsilon}$, де $\varepsilon = \varepsilon(\omega)$ – діелектрична проникність середовища. Тоді побудова Гюйгенса набуває вигляду, наведеного на рис. 1.1. Жирні лінії відповідають сімействам

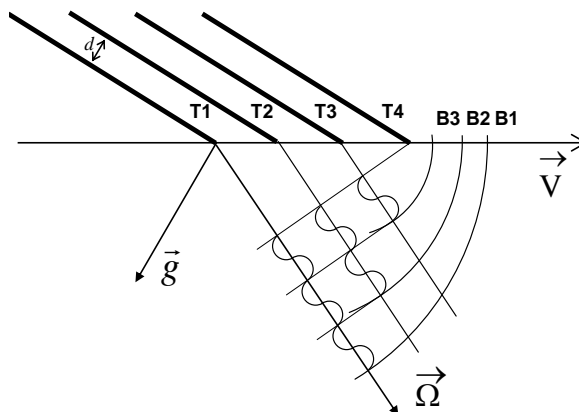


Рис. 1.1. Побудова Гюйгенса для випромінення зарядженою частинкою у періодичному середовищі [24,34]

кристалографічних площин з міжплощинною відстанню d , \vec{g} – вектор оберненої ґратки ($|\vec{g}| = 2\pi/d$). Нехай сферичні хвилі, що виникають при взаємодії зарядженої частинки з атомами середовища, поширюються від періодично розташованих точок Т1–Т3. уздовж деякого напрямку спостереження з одиничним вектором $\vec{\Omega}$. Для спрощення на рис. 1.1 показано формування випромінення для випадку, коли відстань між сусідніми сферами дорівнює одній довжині хвилі випромінення. Тоді для створення когерентного монохроматичного випромінення у напрямку $\vec{\Omega}$ необхідно, щоб відстань між хвильовими поверхнями В1–В3 у цьому напрямку дорівнювала цілому числу m довжин хвиль λ . Тобто

$$\frac{c}{\sqrt{\varepsilon_0}} \tau - \vec{V} \vec{\Omega} \tau = m\lambda, \quad m = 1, 2, \dots \quad (1.2)$$

де $\tau = 1/(\vec{g} \vec{V})$. З формули (1.2) можна визначити частоту випромінення у напрямку $\vec{\Omega}$ при заданих векторах \vec{V} та \vec{g}

$$\omega = m \frac{c(\vec{g} \vec{V})}{c - \sqrt{\varepsilon}(\vec{V} \vec{\Omega})} \quad (1.3)$$

На рис. 1.2 наведено тривимірну схему, яка ілюструє взаємне розташування прямої, вздовж якої рухається заряджена частинка, кристалографічних площин та прямої, вздовж якої до детектора розповсюджується електромагнітне випромінення: θ_B – бреггівський кут, θ – кут спостереження, який відрховується від напрямку руху частинки, \vec{n}_0 – одиничний вектор у напрямку пучка, \vec{n}_B – одиничний вектор у бреггівському напрямку, $\beta = V/c$. Тоді формулу (1.3) можна переписати у вигляді

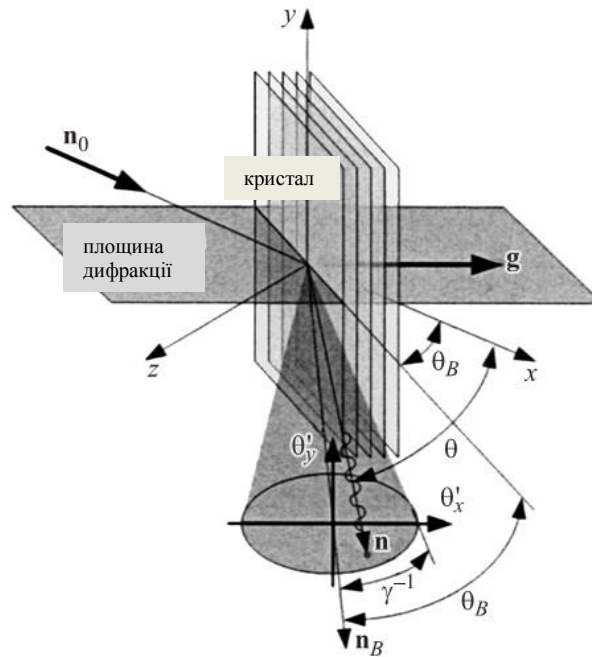


Рис. 1.2. Взаємне розташування напрямку руху зарядженої частинки, кристалографічних площин та напрямку розповсюдження електромагнітного випромінювання (пояснення у тексті) [35]

$$\omega = m \frac{(\vec{g}\vec{V})}{1 - \sqrt{\epsilon}(\vec{n}\vec{V})/c} = m \frac{2\pi c}{d} \frac{\beta \sin \theta_B}{1 - \sqrt{\epsilon}\beta \cos \theta}. \quad (1.4)$$

При цьому напрямки \vec{n}_0 та \vec{n}_B пов'язані співвідношенням

$$\vec{n}_B = \vec{n}_0 - \frac{2(\vec{g}\vec{n}_0)}{|\vec{g}|^2} \vec{g} \quad (1.5)$$

Важлива задача, розв'язок якої є необхідним для аналізу інтенсивності рефлексів ПРВ, полягає у визначенні спектрально-кутового розподілу такого випромінювання. Було показано [36-44], що достатньо ефективний підхід для розв'язку такої задачі полягає у розгляді електромагнітного поля зарядженої частинки, що рухається у середовищі, як системи віртуальних фотонів з енергіями, набагато меншими за енергію частинки. У такому наближенні було отримано функцію розподілу

$$Y_v = \frac{d^2 N_v}{d\omega d\Omega} = \frac{\alpha}{4\pi^2 \omega} \left| \frac{\sin \theta_v}{\xi^{-1} - \cos \theta_v} \right|^2, \quad (1.6)$$

Тут dN_v – кількість віртуальних фотонів у тілесному куті $d\Omega$ у діапазоні частот $\omega \div \omega + d\omega$, $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c} = 137^{-1}$ – стала тонкої структури, θ_v – кут між вектором швидкості зарядженої частинки і хвильовим вектором віртуального фотона, $\xi = V\sqrt{\epsilon}/c$ — швидкість частинки в одиницях фазової швидкості електромагнітної хвилі в середовищі. Якщо частинка релятивістська і за умови малих кутів ($\theta_v \ll 1$) з використанням відомого співвідношення $\xi^{-1} = 1 + 0,5\gamma_{eff}^{-2}$ формула (1.6) набуде вигляду:

$$Y_v = \frac{\alpha}{\pi^2 \omega} \left| \frac{\theta_v}{\gamma_{eff}^{-2} + \theta_v^2} \right|^2. \quad (1.7)$$

Відповідно до (1.7), спектрально-кутовий розподіл віртуальних фотонів має вигляд конуса з віссю, що збігається з вектором швидкості частинки. Важливо, що при $\theta_v = 0$ функція розподілу $Y_v = 0$, а при $\theta_v^2 \gg 0$ функція розподілу змінюється як $Y_v \sim \theta_v^{-2}$. Таким чином, уздовж лінії руху частинки інтенсивність випромінювання дорівнює нулю, а максимумам такого випромінювання відповідають кути відносно осі конуса:

$$\theta_{\max} = \gamma_{eff}^{-1} = \sqrt{\gamma^{-2} + |\chi_0|}, \quad (1.8)$$

де χ_0 – діелектрична сприйнятливість середовища, γ – релятивістський фактор частинки $\gamma = 1/\sqrt{1-V^2/c^2}$ [36,45,46], γ_e – ефективний релятивістський фактор. У вакуумі $\gamma_{eff}^{-1} = \gamma^{-1}$, а за умови, що енергія

віртуальних фотонів суттєво перевищує характерні енергії електронних переходів у атомах середовища, можна записати

$$\gamma_{eff}^{-1} = \sqrt{\gamma^{-2} + \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2}, \quad (1.9)$$

де ω_p – плазмова частота електронів середовища.

На рис. 1.3 наведено схему дифракції віртуальних фотонів ПРВ у кристалі. Пряма лінія відповідає траєкторії руху релятивістської частинки, яка перетинає сімейство кристалографічних площин, що задаються вектором оберненої ґратки \vec{g} . До потрапляння у кристал конус розподілу густини віртуальних фотонів має максимум під кутом γ^{-1} відносно лінії руху частинки. У кристалі такий конус дифрагує і модифікується, набуваючи кутового розтвору максимуму, який вже характеризується кутом γ .

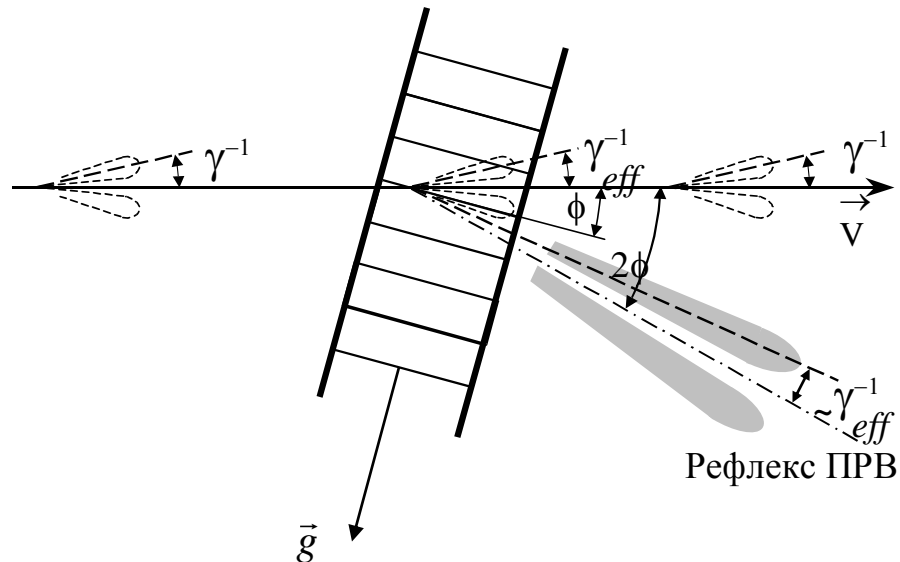


Рис. 1.3. ПРВ як дифракція віртуальних фотонів релятивістської зарядженої частинки [34].

На атомних площинах відбувається дифракція під Бреггівським кутом $\theta_B \equiv \phi$ і кутовий розподіл вже реальних фотонів, дифрагованих у кристалі, визначається конусом, вісь якого на рис. 1.3 спрямована під кутом 2ϕ до напрямку траєкторії. У роботі [47] була отримана формула спектрально-кутового розподілу віртуальних фотонів релятивістської зарядженої частинки за умови $\gamma \gg 1$ з розділом на поздовжню та поперечну складові напрямку поширення віртуальних фотонів

$$Y_V = \frac{\alpha Z^2}{\pi^2 \omega} \frac{\delta_{\perp}^2 + \delta_{\parallel}^2}{\left(\gamma_{eff}^{-2} + \delta_{\perp}^2 + \delta_{\parallel}^2 \right)^2}, \quad (1.10)$$

де $\delta_{\perp}, \delta_{\parallel} \ll 1$ – малі кути, які визначають напрямок поширення випромінювання відносно осі конуса: кути $\delta_{\perp}, \delta_{\parallel}$ відраховуються відповідно у перпендикулярному і паралельному до площини дифракції ПРВ напрямках. Вектори \vec{V} та \vec{g} лежать у площині дифракції. З використанням цього результату, на відміну від (1.10), у роботі [48] було отримано вираз для кутового розподілу ПРВ вже з заданою частотою ω_{PXR} :

$$Y_{PXR} = \frac{dN_{PXR}}{d\Omega} = \frac{\alpha Z^2 M \left| \chi_g(\omega_{PXR}) \right|^2}{\left[c / (V \sqrt{\epsilon}) - \cos \theta \right]^2} \frac{\delta_{\perp}^2 + \delta_{\parallel}^2}{\left(\gamma_{eff}^{-2} + \delta_{\perp}^2 + \delta_{\parallel}^2 \right)^2}, \quad (1.11)$$

де ω_{PXR} визначається формулою (1.4), M – кількість кристалографічних площин, що беруть участь у формірованні рефлексу ПРВ.

Відзначимо відмінність між неперервним спектром віртуальних фотонів з частотною залежністю $\sim \omega^{-1}$ та ПРВ як квазімонохроматичним випроміненням з частотою (1.4). Крім того, частота випромінення, що

відповідає Бреггівському куту θ_B , та частота, що відповідає максимуму піку ПРВ (1.4), відрізняються між собою. Зокрема, за умови $\delta_{\perp}, \delta_{\parallel} \ll 1$:

$$\frac{\omega_B - \omega_{PXR}}{\omega_{PXR}} \approx \frac{\gamma^{-2} + |\chi_o| + \eta^2}{4 \sin^2 \theta_B} = \frac{\gamma_{eff}^{-2} + \eta^2}{4 \sin^2 \theta_B}, \quad (1.12)$$

де $\eta = \sqrt{\delta_{\perp}^2 + \delta_{\parallel}^2}$ – кут відхилення від центру рефлексу ПРВ; мінімальна різниця частот спостерігається у центрі рефлексу ПРВ ($\eta=0$).

Наведений вище розгляд генерування та дифракції ПРВ у кристалах було виконано у кінематичному наближенні [49-51]. Однак, у деяких роботах [32,52-59] опис механізму ПРВ базується на принципах динамічної теорії, згідно з якими головним процесом вважається динамічна поляризація атомів кристалу при взаємодії кулонівського поля частинки з електронною оболонкою атома. Випромінювання таких індукованих диполів, періодично розташованих у кристалічній ґратці, і породжує ПРВ. Раніше відзначалося, що такий підхід дає підстави розглядати ПРВ як поляризаційне гальмівне випромінювання.

Зауважимо, що наведений вище розгляд спектрально-кутового розподілу ПРВ (див. рис. 1.3) було виконано для випадку, коли розсіювання ПРВ відбувається під кутами $2\theta_B < 90^\circ$, тобто у передню напівсферу відносно напрямку руху зарядженої частинки. У рентгеноструктурному аналізі цей випадок відповідає геометрії Лауе (дифракція на проходження). Можливий і випадок, коли Бреггівським напрямкам відповідають кути $2\theta_B > 90^\circ$, тобто розсіювання у задню напівсферу (дифракція Бреггів). Ці обидва випадки наведені на рис. 1.4, їх називають «спостереження вперед» та «спостереження назад» відповідно. Важливо відзначити, що для вимірювання диференціального виходу ПРВ необхідно, щоб кутовий розмір детектору був істотно меншим за кутовий розмір рефлексу. На рис. 1.4 детектор позначено чорним квадратом.

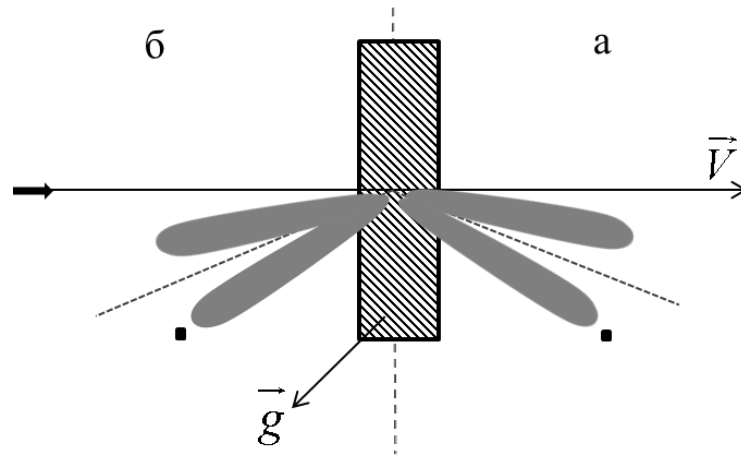


Рис. 1.4. Розповсюдження конусів РРВ у геометрії Лауе (а) та геометрії Бреггів (б).

Таким чином, при розповсюдженні пучка релятивістських заряджених частинок, який у монокристалі перетинає сімейство кристалографічних площин (hkl) з вектором оберненої ґратки $\vec{g} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$, спостерігається дифраговане на таких площинах РРВ. При заданому Бреггівському куті θ_B частота випромінення визначається рівнянням Бреггів $2d \sin \theta_B = n\lambda = n(2\pi c / \omega_B \sqrt{\epsilon})$. Дифраговане РРВ розповсюджується уздовж бокової поверхні конуса з віссю, що визначається кутом Бреггівської дифракції θ_B , а максимуми РРВ спостерігаються під кутами γ^{-1} до цього напрямку. Частота РРВ, яке розповсюджується у напрямках максимумів, відрізняється від частоти ω_B і така відмінність визначається формулою (1.12).

1.1.2. Особливості експериментальних методів збудження та реєстрації РРВ

Вперше РРВ було експериментально зареєстровано у Радянському Союзі у 1985 році на експериментальній базі синхротрона «Сіріус» в Томську [60]. Ця подія стимулювала значний інтерес до вивчення властивостей РРВ у

різних лабораторіях світу. Зокрема, у Харківському фізико-технічному інституту на прискорювачах ЛУЕ-40 та ЛУЕ-200 було проведено ряд експериментів по дослідженню спектрів жорсткого ПРВ з енергією 100 кеВ [60-65]. Як вже відзначалося, розроблявся і теоретичний опис спектрально-кутових властивостей диференціального виходу ПРВ, була показана коректність застосування кінематичної теорії дифракції ПРВ [29]. У 90-х роках дослідження ПРВ тривали в Томську, Харкові, Єревані [66-68], подібні дослідження виконувалися у [69-71], Японії [72], Канаді [71], Німеччині [73].

На сьогодні дослідження характеристик ПРВ залишається актуальною задачею і виконується у ряді лабораторій світу (синхротрон "Сіріус", Томськ, Росія; синхротрон "Пахра", Троїцьк, Росія; прискорювач У-70 ІФВЕ, Москва, Росія; прискорювачі ЛПЕ-40 та ЛПЕ-200, Харків, Україна; синхротрон "INS", Токіо, Японія; мікротрон «МАМІ», Майнц, Німеччина; синхротрон «АРУС», Єреван, Армєнвя; Корнельская лаборатория CHESS, США; схожі дослідження виконуються на синхротронах Гренобля (Франція), Чикаго (США), Осака, (Японвя), DESY, Гамбург (Німеччина).

Ставиться на меті створення потужних квазімонохроматичних джерел рентгенівського випромінення з регульованою енергією для застосування в медицині, біології, мікроелектроніці, фізиці твердого тіла. Більшість установок для дослідження властивостей ПРВ працюють на релятивістських пучках електронів, яким віддають перевагу при аналізі об'ємних кристалів та наносистем [74,75].

У п.1.2. було показано, що спектрально-кутовий розподіл ПРВ характеризується конусоподібним максимумом (рис. 1.3), який розташований поблизу напрямку брегівського розсіювання. Розглянемо цей розподіл більш детально (рис.1.5). Дифраговане випромінення має провал інтенсивності у центрі такого конуса, але при цьому виділяються дві конусоподібні частини навколо точки центру конусу. Тобто, рефлексії ПРВ знаходяться поблизу

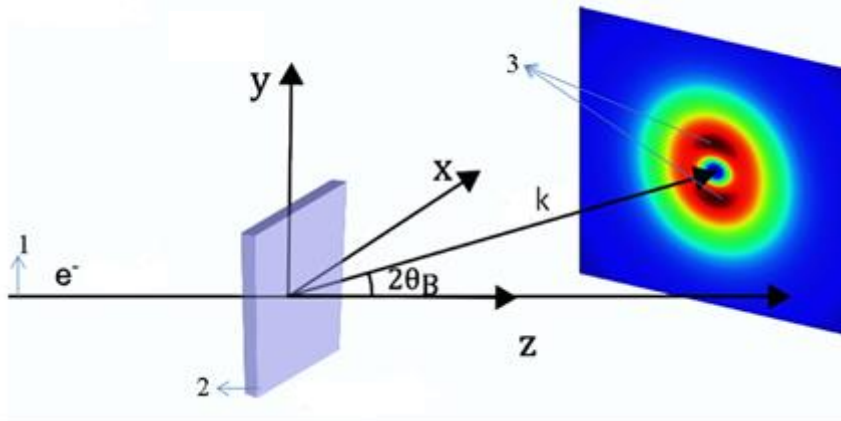


Рис. 1.5. Рефлекси ПРВ для пучка релятивістських електронів [76]: 1 – пучок електронів, 2 – мішень, 3 – рефлекси ПРВ.

центру з Бреггівським хвильовим вектором k , а у самому центрі випромінення відсутнє. Максимальна інтенсивність випромінення концентрується у центрі рефлексів ПРИ, які знаходяться на кутовій відстані γ_{eff}^{-1} від бреггівським центру (див. формулу (1.8)). Отже, при плануванні конкретного експерименту з дослідження параметрів ПРВ необхідно визначити відповідні характеристики пучка електронів та детектора ПРВ, вибрати мішень з потрібними кристалографічними характеристиками, розрахувати геометрію експерименту, а саме, площину реакції, характерні відстані, ступінь вільності мішені. Необхідно також врахувати радіаційний фон мішені від супроводжуючих реакцій.

У роботі [76] розглянуто характеристики рефлексів ПРВ для різних енергіях пучка електронів і різній товщини кристала. Зокрема, на рис. 1.6 наведено картину рефлексів ПРВ при двох енергіях електронів пучка (20 Мев та 50 Мев), але однаковій товщині зразка, а на рис. 1.7 – однаковій енергії пучка, але різних товщина зразка. Як видно з рис. 1.6, при зростанні енергії

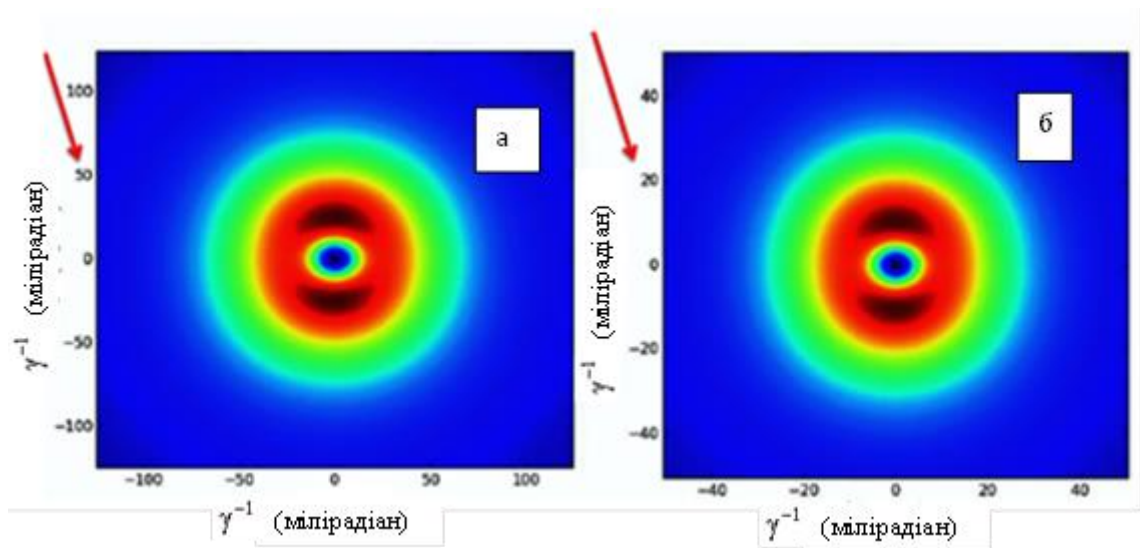


Рис. 1.6. Рефлекси ПРВ для пучків релятивістських електронів з енергіями: а – 20 МеВ, б – 50 МеВ [76]

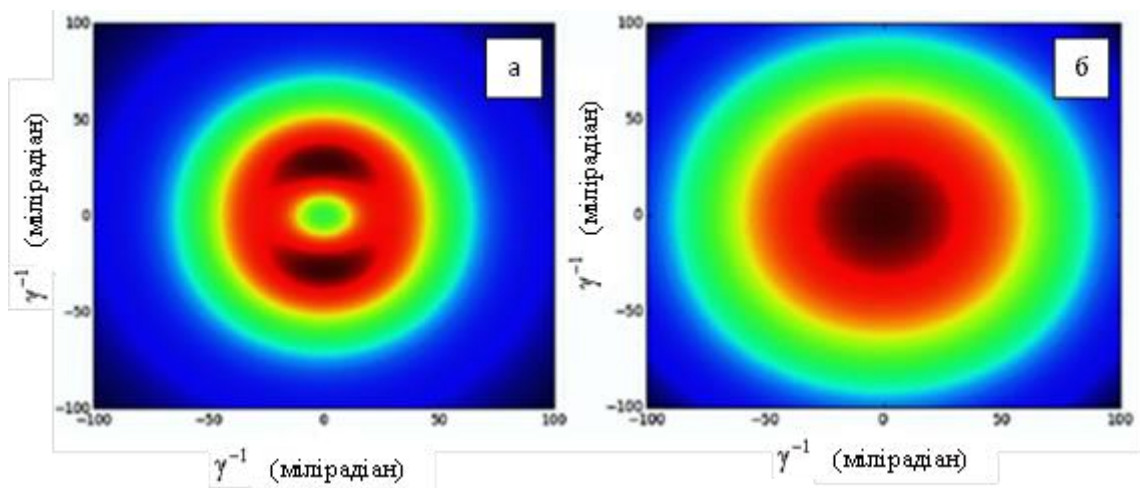


Рис. 1.7. Рефлекси ПРВ (20 Мев) при товщина зразку: а – 50 μm , б – 1 mm [76].

пучка електронів від 20 Мев до 50 МеВ відстань піків рефлексу від Бреггівського центру (γ^{-1}) суттєво зменшується. При зростанні товщини зразку (рис. 1.7.) пучок помітно уширюється і розмивається.

Відзначимо, що за останні 20 років експериментальні та теоретичні дослідження спектрально-кутових характеристик ПРВ, в основному, проводилися на монокристалах з високим ступенем орієнтації блоків

когерентного розсіювання або на полікристаллах без текстури. Як правило, використовувалася симетрична геометрія Лауе (розсіювання у передню півсферу). У той же час, у роботі [77] було вперше теоретично встановлено, що при наближенні кута спостереження до 180° (розсіювання у задню півсферу) піки спектру ПРВ стають аномально вузькими, а їх амплітуда істотно зростає. Це стимулювало експериментальні дослідження спектрально-кутових характеристик ПРВ у геометрії зворотного розсіювання [77,78]. На сьогодні активно розробляються теоретичні моделі, які дозволяють описати результати експериментів як для кристалів і полікристалів з текстурою і мозаїчністю, так а і для мішеней з дрібнозернистими полікристалми і хаотично орієнтованими кристалічними мікроблоками, нанодисперсними полікристалами тощо [78].

Однак, однією з ключових проблем у галузі досліджень ПРВ є обмежена кількість експериментальних установок, придатних для таких робіт, що зумовлено складністю експлуатації прискорювачів і дороговартістю проведення таких експериментів. Крім того, в існуючих для дослідження ПРВ установках є ряд суттєвих недоліків, що обмежують інформативність досліджень ПРВ. Найголовніші з них – низька інтенсивність сигналу ПРВ від середовищ з упорядкованою атомною структурою, а також великий фон, зумовлений додатковим випроміненням мішені за іншими каналами генерації [13,48]. Тому актуальною залишається задача створення низькофоновієї експериментальної установки для дослідження характеристик ПРВ з використанням релятивістських частинок, а також подальша розробка методів урахування впливу різних супроводжуючих чинників на процес генерації, розповсюдження та реєстрації ПРВ. З цією метою було створено установку для дослідження характеристик ПРВ на базі синхротрона "Пахра" у лабораторії прискорювальних пристроїв Відділу фізики високих енергій Фізичного інституту ім. П.Н. Лебедева РАН [1]. Було враховано основні недоліки інших подібних установок і протягом більш ніж 15 років виконувалася постійна модернізація для виконання різних завдань з новітнім

реєструючим обладнанням. Установка отримала назву "Рентген 1" і більш детально вона буде описана у наступному розділі, зокрема, у частині внеску автора в удосконалення такого приладу. Вкажемо на деякі експерименти, виконані на цій установці. Було експериментально досліджено спектрально-кутові розподіли ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів з енергією 7 Мев ($\gamma \approx 14,77$) у полікристалічних фольгах Al і Cu під кутами спостереження $\theta = 90^\circ$, 75° [79,80]; у подальшому отримані піки ПРВ порівнювалися з теорією [81,82]. Як видно з рис. 1.8, 1.9, спостерігається добре узгодження експериментальних результатів з теоретичними розрахунками.

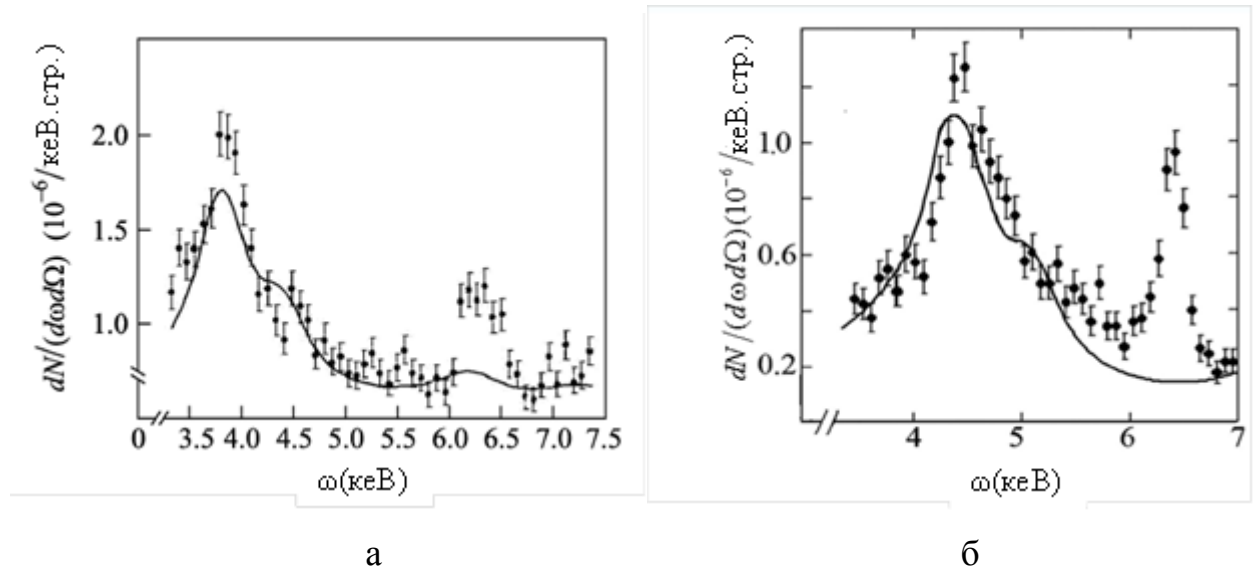


Рис. 1.8. Спектр ПРВ від полікристалічної фольги алюмінію. Суцільна лінія - теоретичний розрахунок [79,80], точки – експеримент: а – $\theta = 90^\circ$; б – $\theta = 75^\circ$ [48,51].

Видно, як енергія піку змінюється залежно від кута спостереження у відповідності з теоретичною моделлю [83], що надає можливість ідентифікувати піки ПРВ у спектрі за їх енергією, у той час як спектральне положення піків характеристичних рентгенівських променів залишається незмінним.

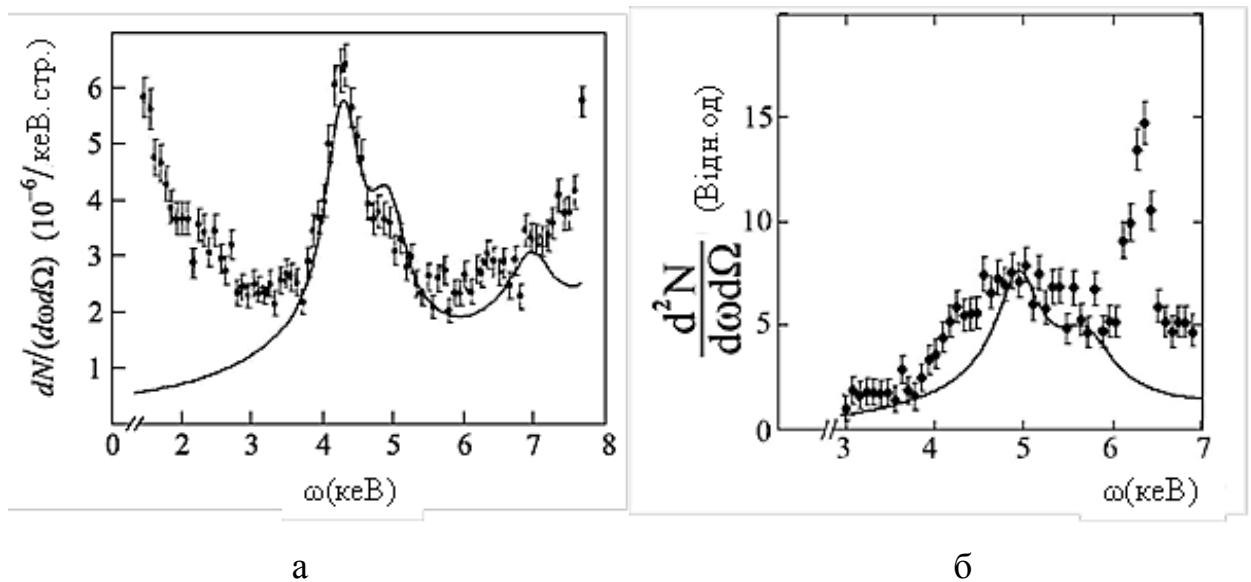


Рис. 1.9. Спектр ПРВ від полікристалічної фольги міді. Суцільна лінія - теоретическій розрахунок [81,82], точки – експеримент: а – $\theta = 90^\circ$; б – $\theta = 75^\circ$ [79,80].

На рис. 1.10 представлено залежність кількості імпульсів зареєстрованого рентгенівського випромінення від енергії фотонів у Бреґгівській геометрії (геометрії зворотного розсіювання). Зразок - фольга алюмінію [84]. Лінії ПРВ від площин (200), (220), (311) та (420) суттєво

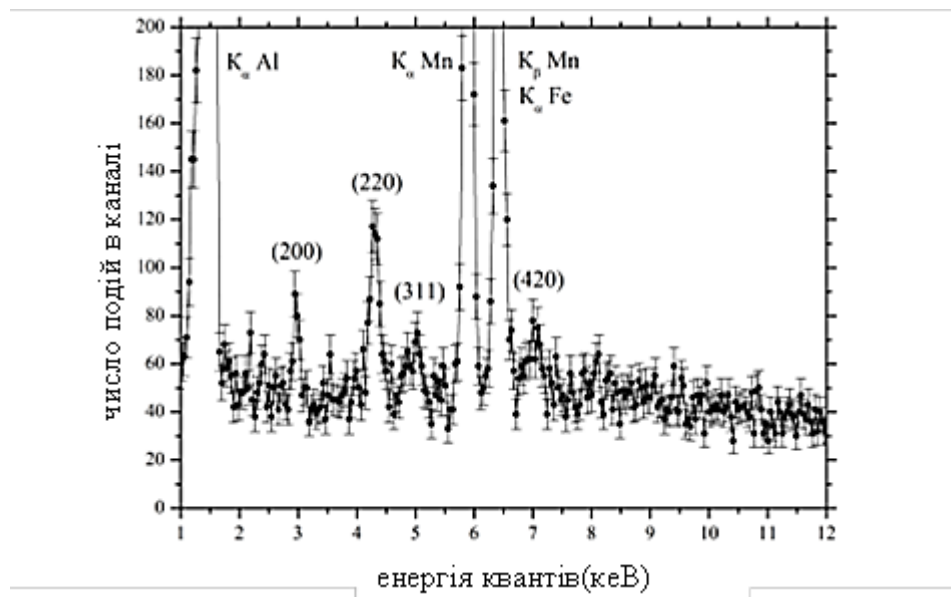


Рис 1.10. Спектр ПРВ від фольги Al (товщина 30 мкм) ($\theta = 180^\circ$) [84].

вузкіші, а ніж у випадку геометрії Лауе, і помітно інтенсивніші. Отже, треба відзначити, що експерименти, виконані на установці «Рентген 1", відрізняються від інших низьким фоном і в той же час досить високим енергетичним розділенням, що дозволило виконувати дослідження спектральної ширини, положення і амплітуди піків ПРВ з достатньо високою точністю [11,84].

У той же час, необхідно відзначити досить суперечливий характер деяких експериментальних робіт, у яких визначалися спектрально-кутові власитивості ПРВ від різних мішеней. Так, у роботах [79,80] спостерігалася лише частина тих піків ПРВ, які мали бути зареєстровані за конкретних умов експериментів. У роботі [85], в якій виконано спробу реєстрації спектру ПРВ під малими кутами на пучку електронів з енергією 2,7 ГеВ від полікристалісної мішені LiF, взагалі не вдалося виділити ПРВ через низьке співвідношення сигнал/фон та недостатню роздільну здатність детекторів.

Таким чином, розробка методів застосування ПРВ для дослідження атомно-просторової структури конденсованої речовини потребує істотної модернізації експериментальних установок, яка б забезпечила максимальне зростання відношення сигнал/фон та достатнє розділення спектрів ПРВ на компоненти. Особливо це важливо в експериментах, в яких розміри блоків когерентного розсіювання малі у порівнянні з ефективною глибиною поглинання ПРВ, оскільки за таких умов суттєво зменшується інтенсивність генерованого у зразку ПРВ. А саме ця ситуація характерна для дослідження структури та морфології мікро- та, особливо, наносистем через визначення спектрально-кутових розподілів ПРВ. Тому у представлені дисертаційній роботі увага сконцентрована саме на вирішенні вказаних задач.

1.2. Двократна $1s^{-1}2p^{-1}$ та трикратна $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізація атомів при розповсюдженні нерелятивістських електронів у кристалах

У попередній частині роботи було розглянуто відомі у літературі результати експериментальних та теоретичних досліджень параметрів ПРВ у кристалах при розповсюдженні релятивістських електронів. Однак, окрім генерації рентгенівського поляризаційного випромінення (окремим випадком якого є ПРВ) та рентгенівського гальмівного випромінення необхідно відзначити інше важливе коло явищ, що супроводжують розповсюдження високоенергетичних електронів (хоча, головним чином, і нерелятивістських) у кристалах і пов'язаних з іонізацією атомів речовини, як однократною, так і багатократною. Ефективність використання електронних пучків з енергіями в одиниці – десятки кеВ для іонізації атомів визначається можливостями отримання високоінтенсивних первинних рентгенівських характеристичних спектрів атомів для дослідження електронної структури конденсованої речовини. У даній частині роботи будуть розглянуті відомі у літературі результати досліджень рентгенівських характеристичних K -спектрів з однією додатковою вакансією у L -підоболонках – $K\alpha L^1$ сателітів (сателітів KL іонізації або, в інших позначеннях [86], сателітів $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізації) та двома додатковими вакансіями у L -підоболонках – $K\alpha L^2$ -сателітів (сателітів KL^2 або $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації). Надалі будемо використовувати саме другий тип запису для позначення електронних конфігурацій з вакансіями (знак мінус визначає кількість відсутніх електронів у відповідній електронній оболонці чи підоболонці) як такий, що більш точно вказує одноелектронні квантові числа утвореної вакансії.

1.2.1. Перерізи однократної іонізації електронних оболонок атомів при електронному бомбардуванні

Важливо відзначити, що процес двоелектронної $1s^{-1}2p^{-1}$ чи триелектронної $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації атому у літературі прийнято розглядати як двоетапний – на першому етапі в результаті взаємодії атома з електронним пучком (чи фотонами) народжується $1s^{-1}$ вакансія, а на другому етапі вже відбувається подальша автоіонізація атому з викидом з атому одного чи двох $2p$ електронів [87,88].

Теоретичний опис процесу взаємодії електрона, що рухається у твердому тілі з певною кінетичною енергією E , з електронною оболонкою атома, яка характеризується одночастинковими квантовими числами (nl) , вперше було виконано у борнівському наближенні плоских хвиль у роботі [89]. Було отримано вираз для перерізу іонізації електронної оболонки атому нерелятивістськими електронами, який у літературі називають формулою Бете:

$$\sigma_{nl}(E) = \frac{A_{nl} N_{nl}}{E_{nl}^2} \cdot \frac{\ln(B_{nl} \varepsilon)}{\varepsilon}, \quad (1.13)$$

У формулі (1.13) A_{nl} , B_{nl} – коефіцієнти Бете, які визначаються окремо для кожної підоболонки; N_{nl} – кількість електронів у підоболонці; E_{nl} – енергія іонізації підоболонки (nl) ; $\varepsilon = E / E_{nl}$. Формула (1.15), незважаючи на певні спрощення, широко застосовується при описі іонізації атома електронним ударом, особливо, коли йдеться про іонізацію $1s$ оболонки.

У подальшому було виконано удосконалення та розвиток підходу [89]. Наприклад, у роботі [90] у борнівському наближенні спотворених плоских хвиль отримано наступний вираз для перерізу іонізації

$$\sigma(\varepsilon) = \frac{A(Z)}{B(Z) + \varepsilon} \ln(\varepsilon), \quad (1.14)$$

де коефіцієнти $A(Z)$ та $B(Z)$ апроксимуються окремими виразами для кожної підоболонки. Наприклад, для $2p_{3/2}$ підоболонки $A(Z) = 6,599 \cdot 10^{12} Z^{-5,0797}$, $B(Z) = (4,8642Z^{-0,5645} - 0,5)$.

Інший вираз для перерізу іонізації електронним ударом було отримано напівемпіричним шляхом через введення корегуючих параметрів у формулі (1.13), що дозволило найкращим чином добитися узгодження результатів обчислень з експериментальними даними. Така формула має вигляд [91]:

$$\sigma_{nl} = N_{nl} \pi a_0^2 \left(a + \frac{b}{\varepsilon} + \frac{c}{\varepsilon^2} \right) \cdot \left(\frac{Ry}{E_{nl}} \right)^{C(\varepsilon)} \cdot \frac{\ln(\varepsilon)}{\varepsilon}, \quad (1.15)$$

де a_0 – перший борівський радіус, $C(\varepsilon) = \left(d + \frac{e}{\varepsilon} + \frac{f}{\varepsilon^2} \right)$, параметри a, b, c, d, e, f підбираються для кожної оболонки атому у певному діапазоні Z . Використання формул (1.13) – (1.15) дозволяє виконувати обчислення перерізів однократної іонізації у діапазоні енергій електронів пучка від одиниць до сотен кеВ для різних електронних підоболонок з точністю 3 – 20% залежно від порядкового номера атому та обраної електронної підоболонки. У цілому це забезпечує необхідну точність при виконанні електронно-зондового елементного аналізу, дослідженні Оже-спектрів за електронного збудження, дослідженнях радіаційно-стимульованих дефектів у твердому тілі при опроміненні електронним пучком.

1.2.2. Структура $K\alpha L^1$ та $K\alpha L^2$ спектрів атомів елементів $10 \leq Z \leq 30$

При аналізі структури спектрів $K\alpha L^1$ – сателітів необхідно враховувати, що для легких елементів $Z \leq 14$ відшукування термів $1s^{-1}2s^{-1}$ та $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурацій доцільно виконувати у наближенні LS – зв’язку, тоді як при

збільшенні порядкового номеру елементу зростає роль jj -зв'язку, що призводить до поступового переходу LS -структури термів $1s^{-1}2s^{-1}$ та $1s^{-1}2p^{-1}$ вконфігурацій до jj -структури.

Для елементів $Z \leq 14$ було показано [92-94], що основні компоненти групи $K\alpha L^1$ -сателітів зумовлені наступними дипольними переходами між термами початкових та кінцевих двоакансійних конфігурацій:

$K\alpha'$ – сателіт: $^1P(1s^{-1}2p^{-1}) - ^1S(2p^{-2})$ та $^1S(1s^{-1}2s^{-1}) - ^1P(2s^{-1}2p^{-1})$;

$K\alpha_3$ – сателіт: $^3P(1s^{-1}2p^{-1}) - ^3P(2p^{-2})$;

$K\alpha_3'$ – сателіт: $^3S(1s^{-1}2s^{-1}) - ^3P(2s^{-1}2p^{-1})$;

$K\alpha_4$: $^1P(1s^{-1}2p^{-1}) - ^1D(2p^{-2})$.

Отже, у структурі спектру $K\alpha L^1$ -сателітів можна виділити три групи ліній: а) $K\alpha'$ та $K\alpha_4$ сателіти, які відповідають радіаційному розпаду станів 1P терма конфігурації $1s^{-1}2p^{-1}$; б) $K\alpha_3$ сателіт, що відповідає радіаційному розпаду станів 3P терма конфігурації $1s^{-1}2p^{-1}$; в) $K\alpha_3'$ сателіт, який відповідає радіаційному розпаду станів 3S терма $1s^{-1}2s^{-1}$ конфігурації, а також складова $K\alpha'$ сателіту, що відповідає переходам $^1S(1s^{-1}2s^{-1}) - ^1P(2s^{-1}2p^{-1})$.

При розгляді структури $K\alpha L^1$ сателітних ліній важливим є питання про співвідношення між інтенсивностями вказаних вище окремих компонентів групи ліній $K\alpha' - K\alpha_3 - K\alpha_3' - K\alpha_4$, які випромінюються при радіаційному розпаді двох типів двоакансійних конфігурацій – $1s^{-1}2p^{-1}$ та $1s^{-1}2s^{-1}$. Було встановлено, що при обчисленні імовірності створення початкових станів 1P , 3P , 1S та 3S термів у наближенні миттєвого збурення (надалі – shake-off (SO) наближення) відносна інтенсивність груп ліній $I(1s^{-1}2s^{-1})/I(1s^{-1}2p^{-1})$ монотонно спадає при зростанні порядкового номеру елемента і складає для Al лише 4 – 5% [95,96]. Тому з достатньою точністю можна вважати, що для елементів $10 \leq Z \leq 20$ фактично структура $K\alpha L^1$ сателітів визначається двома основними групами радіаційних переходів, початкові та кінцеві терми яких обчислюються у наближенні LS – зв'язку:

$K\alpha'$, $K\alpha_4$: переходи $^1P(1s^{-1}2p^{-1}) - ^1S, ^1D(2p^{-2})$

$K\alpha_3$: переходи $^3P(1s^{-1}2p^{-1}) - ^3P(2p^{-2})$,

а внесок переходів зі станів $1s^{-1}2s^{-1}$ можна окремо не враховувати, оскільки він незначний та ще й розподіляється між лініями групи $1s^{-1}2p^{-1}$ сателітів. Зауважимо, що вказані сателіти розташовані на короткохвильовому схилі $K\alpha_1$ лінії, оскільки їм відповідають радіаційні переходи у присутності додаткової вакансії у $2p$ підоболонці, тобто, в ефективному полі ядра з дещо більшим значенням $Z_{\text{еф}}$ (екранування поля ядра $2p$ електронами у присутності вакансії у цій підоболонці стає меншим).

Як зазначалося вище, при подальшому зростанні порядкового номеру елементу для $Z > 20$ все більше проявляється спін-орбітальна взаємодія і спостерігається поступовий перехід до jj -схеми додавання орбітальних та спінових моментів електронів в атомі. Було отримано, що для елементів $20 \leq Z \leq 30$ вже необхідно враховувати мультиплетне розщеплення термів [92,97-100] і тоді класифікація переходів, що відповідають окремим компонентам групи $K\alpha L^1$ -лінії, дещо ускладнюється. Як приклад такого ускладнення на рис. 1.11 наведено експериментальний $K\alpha L^1$ спектр Si ($Z=14$) [101], який можна порівняти з більш складним за структурою $K\alpha L^1$ спектром Cr ($Z=24$) (рис. 1.12) [102]. У таблиці 1.1 представлено мультиплетну структуру таких ліній для елементів $20 \leq Z \leq 29$, обчислену у роботі [100]. Саме ці дані будуть нами використовуватися при дослідженні зміни структури $K\alpha L^1$ спектру $3d$ -елементів Ti, V, Cr при переході від металів до відповідних оксидів (див. далі розділ 4). Таким чином, можна вважати, що

при радіаційному розпаді двовакансійних станів $1s^{-1}2p^{-1}$ випромінюється група ліній, які зумовлені радіаційними переходами із станів двох основних термів 1P та 3P .

Таблиця 1.1

Мультиплетна структура $K\alpha L^1$ ліній елементів $20 \leq Z \leq 29$ [100]

Z	α_4	α_3	α'_3	α'	α''_3
29(Cu)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (h) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (g)	—
28(Ni)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g)
27(Co)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g)
26(Fe)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g)
25(Mn)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_1$ (d)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)
24(Cr)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_1$ (d)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)
23(V)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_1$ (d)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)
22(Ti)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b) $^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^1P_1 \rightarrow ^1S_0$ (e)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_1$ (d)
21(Sc)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b) $^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^1P_1 \rightarrow ^1S_0$ (e)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_1$ (d)
20(Ca)	$^1P_1 \rightarrow ^1D_2$ (a)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_2$ (b) $^3P_1 \rightarrow ^3P_0$ (g) $^3P_1 \rightarrow ^3P_1$ (h)	$^3P_1 \rightarrow ^3P_2$ (c) $^3P_0 \rightarrow ^3P_1$ (f)	$^1P_1 \rightarrow ^1S_0$ (e)	$^3P_2 \rightarrow ^3P_1$ (d)

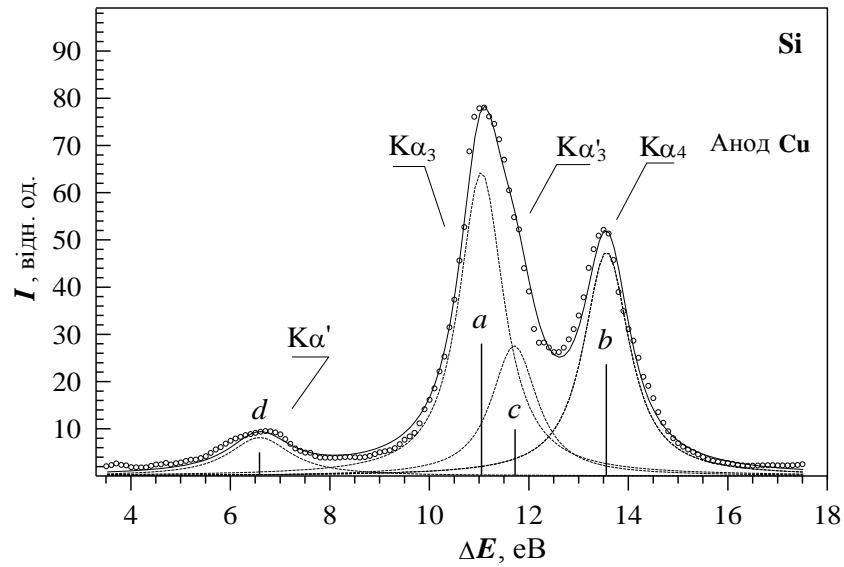


Рис. 1.11. Група $K\alpha L^1$ –сателітів Si при збудженні монохроматизованим $K\alpha_{1,2}$ –випромінення Cu [101]. Уздовж осі абсцис відкладено різниці між енергіями компонентів та енергією $K\alpha_1$ лінії Si ($E(K\alpha_1)=1741\text{eV}$).

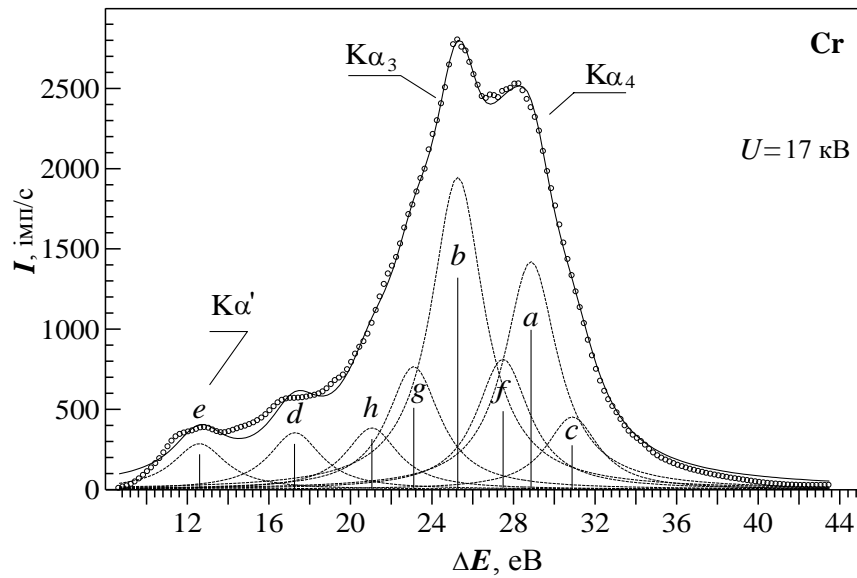


Рис. 1.12. Група $K\alpha L^1$ сателітів Cr при електронному бомбардуванні. Прискорююча напруга $U = 17\text{ кВ}$ [102]. Уздовж осі абсцис відкладено різниці між енергіями компонентів та енергією $K\alpha_1$ лінії Cr ($E(K\alpha_1)=5419\text{eV}$).

Важливо відзначити, що окрім двоелектронної $1s^{-1}2p^{-1}$ можливим є процес, у якому виникнення первинної вакансії в $1s$ оболонці супроводжується викидом не одного, а двох $2p$ електронів, тобто утворенням тривакансійної конфігурації $1s^{-1}2p^{-2}$. У цьому випадку при подальшому радіаційному заповненні вакансії в $1s$ оболонці $2p$ електроном у присутності двох додаткових вакансій у $2p$ -підоболонці випромінюється група рентгенівських емісійних $K\alpha L^2$ сателітів. Важливо підкреслити, що інтенсивність ліній $K\alpha L^2$ спектру є досить важливим параметром при дослідженні взаємодії високоенергетичних електронів з атомами твердого тіла, оскільки дозволяє визначати характеристики такої взаємодії, механізми подальшої додаткової іонізації атомів при утворенні первинної $1s$ вакансії та особливості міжатомного зв'язку у твердому тілі [103,104]. Спектр таких сателітів більш складний, ніж $K\alpha L^1$, оскільки тривакансійним станам відповідає більша кількість дублетних термів як початкових, так і кінцевих конфігурацій. Крім того, можливим є утворення конфігурацій з додатковими вакансіями у $2s$ підоболонці (наприклад, $1s^{-1}2s^{-2}$ та $1s^{-1}2s^{-1}p^{-1}$), радіаційний розпад яких також призводить до випромінення сателітних ліній.

Експериментальні та теоретичні дослідження структури ліній $K\alpha L^2$ спектру показали, що інтенсивність цих ліній більш ніж на порядок нижча за інтенсивність $K\alpha L^1$ ліній і тому такі сателіти можуть достовірно реєструватися лише для легких елементів $10 \leq Z \leq 19$ [95,96,105]. Зокрема, у роботах [95,105,106] було показано, що для Na, Mg, Al та Si спектр $K\alpha L^2$ складається з ряду компонентів $a-f$, які на прикладі Si вказано на рис. 1.13.

Згідно з вказаними роботами, цим компонентам відповідають наступні радіаційні переходи:

$$\begin{aligned} a: & \quad {}^4P(1s^{-1}2p^{-2}) - {}^4S(2p^{-3}); \\ b: & \quad {}^2P(1s^{-1}2p^{-2}) - {}^2D(2p^{-3}); \\ c: & \quad {}^2D(1s^{-1}2p^{-2}) - {}^2D(2p^{-3}); \end{aligned} \quad (1.16)$$

$$d: {}^2P(1s^{-1}2p^{-2}) - {}^2P(2p^{-3});$$

$$e: {}^2D(1s^{-1}2p^{-2}) - {}^2P(2p^{-3});$$

$$f: {}^2S(1s^{-1}2p^{-2}) - {}^2P(2p^{-3}).$$

Як видно, усі ці переходи відображують радіаційний розпад станів тривакансійної $1s^{-1}2p^{-2}$ конфігурації. Було показано, що як і у випадку $K\alpha L^1$

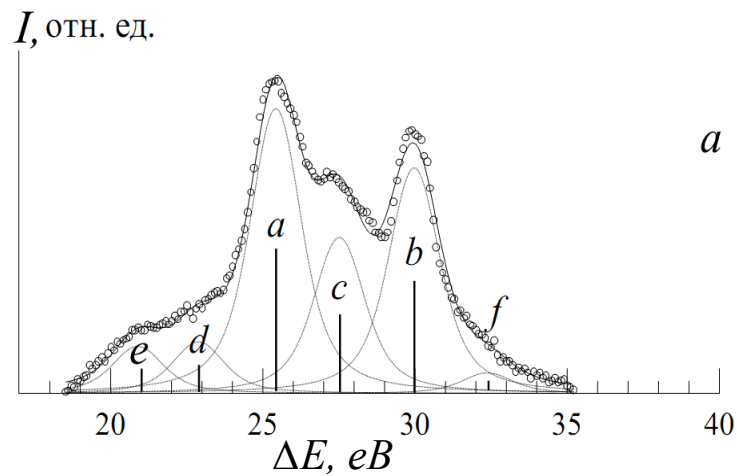


Рис. 1.13. Експериментальний $K\alpha L^2$ спектр Si при фотонному збудженні [106]. Уздовж осі абсцис відкладено різниці між енергіями компонентів та енергією $K\alpha_1$ лінії Si ($E(K\alpha_1) = 1741 \text{ eV}$).

сателітів, внесок переходів $(1s^{-1}2s^{-2} - 2s^{-2}2p^{-1})$ та $(1s^{-1}2s^{-1}p^{-1} - 2s^{-1}p^{-2})$ в інтенсивність групи ліній $K\alpha L^2$ загалом не перевищує 10% від інтенсивності переходів $(1s^{-1}2p^{-2} - 1s^{-1}2p^{-2})$ [95,96,105]. Тому при інтерпретації експериментальних $K\alpha L^2$ спектрів прийнято розглядати тільки систему переходів (1.16), які відповідають саме розпаду станів $1s^{-1}2p^{-2}$ конфігурації.

Таким чином, утворення вакансії в $1s$ оболонці атомів твердого тіла у результаті їх взаємодії з пучком високоенергетичних електронів може супроводжуватися подальшою автоіонізацією атомів з виникненням

додаткових вакансій у $2p$ підоболонці. У випадку, коли у $2p$ підоболонці утворюється одна додаткова вакансія, генеруються стани $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації, радіаційний розпад яких спричиняє випромінення $K\alpha L^1$ сателітів. Якщо додаткових вакансій у $2p$ підоболонці дві, то радіаційний розпад станів $1s^{-1}2p^{-2}$ конфігурації призводить до випромінення групи $K\alpha L^2$ сателітів.

1.2.3. Механізми двоелектронної $1s^{-1}2p^{-1}$ та триелектронної $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації атомів

У попередній частині роботи було проаналізовано структуру груп $K\alpha L^1$ та $K\alpha L^2$ ліній. Розглянемо далі механізми, за якими утворюються конфігурації $1s^{-1}2p^{-1}$ та $1s^{-1}2p^{-2}$ при іонізації $1s$ оболонки атому високоенергетичними електронами. Уперше у роботах [87,88] було показано, що утворення додаткових вакансій у $2p$ підоболонці відбувається автоіонізаційним шляхом як реакція електронної оболонки атому на швидку зміну самоузгодженого поля при швидкому вильоті з атому електрона (чи декількох електронів) з $2p$ підоболонки. У вказаних роботах було використано ідеї, які розроблялися для опису іонізації електронних оболонок атому при β^\pm розпаді [107,108], а саме, викид з ядра електрона чи позитрона раптово змінює гамільноміан електронної підсистеми атому, в результаті чого електрон з деякої електронної оболонки переходить у стани неперервного спектру. Таке наближення отримало назву наближення миттєвого збурення, а сам процес в англomовній літературі позначають як “shake-off” (скорочено – SO), або «струшування» електрона. Імовірність SO процесу, при якому в результаті β^\pm -розпаду один електрон з одночастинковими квантовими числами (nlj) залишиться у тій же підоболонці після зміни заряду ядра від Z до $Z \mp 1$, визначається квадратом

інтегралу перекриття $K = \left| \int \Psi_{njl}^*(Z \mp 1) \Psi_{njl}(Z) d\tau \right|^2$, де $\Psi_{njl}(Z)$ – одноелектронні хвильові функції, що відповідають еквівалентним електронам nl –підоболонки до акту β^\pm –розпаду, а $\Psi_{njl}(Z \mp 1)$ – одноелектронні хвильові функції для цієї ж оболонки після β^\pm –розпаду. Тоді, імовірність залишитися усім N –електронам цієї підоболонки дорівнює K^N . Таким чином, імовірність вильоту з атому будь-якого одного електрона з квантовими числами (nlj) у наближенні миттєвого збурення (SO) дорівнює [109,110]

$$P = 1 - K^N - P_F \quad (1.17)$$

де P_F визначає імовірність переходів в усі можливі заповнені стани.

У подальшому такий підхід було розвинено для обчислення імовірності викиду електрона з певної електронної підоболонки при утворенні вакансії в іншій електронній підоболонці для елементів $2 \leq Z \leq 36$ [111,112], а у роботах [86,113] запропоновано досить прості апроксимуючі формули, які дозволяють за двома табульованими параметрами розрахувати імовірність SO для будь-якої комбінації – первинна вакансія у $n_1 l_1$ –підоболонці, вторинна вакансія у $n_2 l_2$ –підоболонці. Було показано, що для елемента Si ($Z=14$) імовірність утворення додаткової $2p$ вакансії при іонізації $1s$ оболонки складає $P_{1s^{-1}2p^{-1}} = 0,055$ (що добре узгоджується з експериментальним значенням відносної інтенсивності групи $K\alpha L^1$ сателітів Si) і зменшується при зростанні порядкового номеру як $P_{1s^{-1}2p^{-1}} = Z^{-2,4}$.

Необхідно підкреслити, що вказаний підхід миттєвого збурення не враховує ряд процесів, пов'язаних з електронними кореляціями у початкових та кінцевих дво- та тривакансійних станах. Урахування таких кореляцій стає суттєвим тоді, коли іонізація $1s$ оболонки здійснюється біля порогу K –іонізації, тобто за умови, що $1s$ електрон залишає атом достатньо повільно і

умова миттєвості порушується. Зокрема, у роботах [101,102,114-116] було експериментально та теоретично встановлено, що при наближенні енергії фотонів, які поглинаються атомом, до порогу іонізації $1s$ оболонки в атомах елементів Ne, Si, Sc, Cr спостерігається відхилення відношення перерізів збудження $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$ термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації від статистичного значення 3:1. А саме, таке відношення перерізів зростає майже до величини 2:1. У роботах [114,115] причина такого явища пов'язується з радіальною релаксацією електронних оболонок атому у полі $1s^{-1}$ та $2p^{-1}$ вакансій, яка проявляється за умови, що $1s$ електрон при поглинанні фотону залишає атом повільно, тобто фотоіонізація відбувається біля енергетичного порогу $1s$ оболонки. По іншому вказані ефекти пояснюють у роботах [117-119], у яких запропоновано враховувати конфігураційну взаємодію двох континуумів – $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)+\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)+\epsilon p$ (тобто атом з двома вакансіями $1s^{-1}$ та $2p^{-1}$ перебуває у стані 1P або 3P термів та $2p$ електрон перебуває у стані неперервного спектру). Автори вказаних робіт вважають, що така конфігураційна взаємодія стає суттєвою саме тоді, коли $1s$ фотоелектрон залишає атом повільно (з енергією одиниці – десятки eV).

Зовсім інший ефект спостерігався при електронному бомбардуванні атомів елементів Si та Cr біля порогу K -іонізації [102,120]. Було встановлено, що при електронному збудженні атому біля енергетичного порогу відношення термів $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$ також відхиляється від статистичного, але у протилежний бік, зростаючи майже до 4:1. Автори показали, що такий ефект при наближенні до порогу $1s$ іонізації може бути зумовлений прямою двоелектронною іонізацією $1s^{-1}2p^{-1}$, за якої саме біля енергетичного порогу зростає вихід генерації саме станів 3P термів у порівнянні з виходом генерації 1P термів.

Отже, необхідно відзначити, при біляпороговому збудженні електронами та фотонами станів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації атомів $3p$ та $3d$ елементів спостерігаються багаточастинкові ефекти, що зумовлюють

відхилення перерізів $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$ від статистичного значення 3:1 як у бік зменшення (фотопоглинання), так і у бік зростання (електронне бомбардування). Необхідно констатувати, що на сьогодні не існує єдиного теоретичного підходу, який би дозволив послідовно пояснити такі явища.

З точки зору фізики твердого тіла важливі ефекти у $K\alpha L^1$ спектрах спостерігаються при переході від чистих $3p$ та $3d$ елементів до їх іонно-ковалентних сполук. Зокрема, було експериментально показано [116,121-123], що при появі ефективного заряду на атомах Si, S, P, Sc, Ti у сполуках як з позитивним, так і негативним ефективним зарядом вказаних елементів відношення $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$ зменшується на 20 – 70% пропорційно до величини ефективного заряду атомів Si, S, P, Ti. Спроби пояснити такі зміни впливом заселеності валентних орбіталей на імовірність переходів Костера - Кроніга типу $1s^{-1}2s^{-1} - 1s^{-1}2p^{-1}3p^{-1}$ [87], а також конфігураційною взаємодією континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)+\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)+\epsilon p$ за умови різного екранування електронами провідності та локалізованих парноелектронних зв'язків кулонівської взаємодії ϵp електрона з атомним залишком [88] є досить суперечливими і не дозволяють отримати послідовний опис впливу хімічного зв'язку атому, що випромінює, на параметри $K\alpha L^1$ спектру.

При дослідженні властивостей $K\alpha L^2$ спектрів елементів $10 \leq Z \leq 20$ також спостерігаються ефекти, які не знаходять свого пояснення у рамках тільки SO механізму генерації станів $1s^{-1}2p^{-2}$ конфігурації. Зокрема, у роботі [95] для елементів Na, Mg, Al при електронному бомбардуванні було отримано, що відносна інтенсивність усієї групи $K\alpha L^2$ ліній відносно інтенсивності $K\alpha_{1,2}$ ліній $I(K\alpha L^2)/I(K\alpha_{1,2})$ майже у два рази перевищує розрахунок, виконаний у наближенні незалежного SO двох $2p$ електронів. Однак, при цьому не було з'ясовано, як така імовірність залежить від енергії електронів пучка, що важливо для визначення механізму формування аномальної інтенсивності $I(K\alpha L^2)/I(K\alpha_{1,2})$. У роботі [106] було

експериментально встановлено, що при біляпороговому фотопоглинанні атомами Si змінюється відношення перерізів збудження дублетних термів початкової $1s^{-1}2p^{-2}$ конфігурації, зокрема, відношення $\sigma(^4P)/\sigma(^2P)$ зростає, на відміну від відношення $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$, яке біля порогу зменшується. Таким чином, у $K\alpha L^2$ спектрах, як і у $K\alpha L^1$ спектрах, спостерігається ряд ефектів, які свідчать про обмеженість одноелектронного SO наближення та потребують подальшого експериментального дослідження.

Висновки розділу 1

1. ПРВ у кристалах у більшості робіт розглядається як результат дифракції віртуальних фотонів, що породжуються електричним полем релятивістської зарядженої частинки, на періодичній атомній структурі кристалів. Такий процес супроводжується появою максимумів ПРВ з частотами, які визначаються рівнянням Бреггів при заданій геометрії експерименту.

2. Конкуруючим з ПРВ (і взагалі, поляризаційним рентгенівським випроміненням) є гальмівне рентгенівське випромінення. Відмінності між цими типами неперервного випромінення, що генерується при русі зарядженої частинки у речовині, проявляються як у різній інтенсивності, так і різній формі кутового розподілу.

3. До теперішнього часу відсутня загальна теорія, яка б послідовно описувала механізм генерації ПРВ у речовині. Відомі у літературі теоретичні моделі виникнення та дифракції ПРВ було розроблено або для повністю розорієнтованих полікристалів (полікристалів без текстури) [13,104], або для монокристалів з високим ступенем структурної досконалості [125]. Щодо частково-упорядкованих систем, а також нанорозмірних структур, то на сьогодні відсутня теоретична модель генерації ПРВ у таких середовищах

4. Дослідження параметрів ПРВ при проходженні зарядженої частинки у кристалах може розглядатися як потенційно інформативна методика діагностики атомно-просторової структури речовини. Це визначається: а) високою просторовою роздільною здатністю вимірювань рефлексів ПРВ при використанні магнітооптичних систем для фокусування пучка електронів; б) можливістю варіювання енергії фотонів ПРВ вибором відповідної геометрії експерименту, що спрощує використання енергодисперсійної методики реєстрації ПРВ; в) можливістю отримувати інформацію про структуру мішені з глибини, яка суттєво перевищує товщину досліджуваного шару методом рентгеноструктурного аналізу. Реалізація такої методики вимагає удосконалення схеми отримання максимумів ПРВ, зокрема, перехід до геометрії зворотнього розсіювання, підвищення чутливості реєструючої апаратури, розробки програмного забезпечення для виділення та обробки слабких сигналів ПРВ на фоні гальмівного та характеристичного випромінювання.

5. При взаємодії пучка високоенергетичних електронів з атомами твердого тіла первинна іонізація $1s$ оболонки може супроводжуватися додатковою іонізацією $2p$ підоболонки, у результаті якої з цієї підоболонки може бути ежектований один або декілька $2p$ електронів. Викид електронів з $2p$ підоболонки відбувається за SO механізмом і призводить до утворення двовакансійних $1s^{-1}2p^{-1}$ та тривакансійних станів $1s^{-1}2p^{-2}$.

6. У результаті радіаційного розпаду $1s^{-1}2p^{-1}$ станів випромінюється група короткохвильових $K\alpha L^1$ сателітів, яким відповідають радіаційні переходи $1s^{-1}2p^{-1} - 2p^{-2}$. Відносна інтенсивність компонентів $K\alpha L^1$ спектру атомів $3p$ та $3d$ елементів у кристалах виявляє значну чутливість до характеру хімічного зв'язку атома, який випромінює, з атомами найближчого оточення. У той же час, експериментальні дослідження такого впливу для $3d$ елементів є обмеженими і потребують розширення кола елементів та їх іонно-ковалентних сполук. Не з'ясованими залишаються і питання щодо

механізмів, за якими відбувається вплив системи валентних електронів та електронів провідності на відносні інтенсивності окремих компонентів $K\alpha L^1$ спектру.

7. При радіаційних переходах $1s^{-1}2p^{-2} - 2p^{-3}$ між станами тривакансіних конфігурацій випромінюється група короткохвильових $K\alpha L^2$ сателітів. Експериментальні дослідження відносної інтенсивності таких сателітів для елементів $11 \leq Z \leq 14$ показують, що відносна інтенсивність $I(K\alpha L^2)/I(K\alpha_{1,2})$ майже у 2 рази перевищує значення, теоретично розраховане у SO наближенні, що може свідчити про значну роль кореляційних ефектів у процесах триелектронної $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації. Залежність такої відносної інтенсивності від енергії електронів пучка була експериментально визначена лише для Si. Однак, для металів така залежність не досліджувалася, хоча саме в металах динамічне екранування вільними електронами взаємодії повільних $3p$ електронів з тривакансійним атомним залишком може суттєво впливати на величину та характер міжелектронних кореляцій у процесі $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації.

РОЗДІЛ 2. МЕТОДИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО ДОСЛІДЖЕННЯ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЕННЯ ТА РЕНТГЕНІВСЬКИХ ЕМІСІЙНИХ СПЕКТРІВ КРАТНОІОНІЗОВАНИХ АТОМІВ

У даному розділі представлено методику дослідження спектрів ПРВ, що включає розгляд будови та режимів функціонування основних елементів експериментальної установки для спостереження ПРВ, а саме, системи формування та фокусування електронного пучка, блоку гоніометру та мішені, а також системи реєстрації рентгенівського випромінення. Описано процедуру проведення експерименту зі збудження та реєстрації ПРВ при застосуванні геометрії зворотнього розсіювання ПРВ відносно напрямку пучка. Наведено методику отримання та обробки рентгенівських емісійних спектрів кратноіонізованих атомів $3p$ та $3d$ елементів при збудженні високоенергетичними електронами.

2.1. Принцип функціонування та блок-схема експериментальної установки «Рентген 1»

Експериментальний комплекс, з використанням якого у представленій дисертаційній роботі виконувалися дослідження ПРВ, має назву "Рентген 1" і, як зазначалося у п.1.3, створений на базі синхротрону "Пахра" у лабораторії прискорювальних пристроїв Відділу фізики високих енергій Фізичного інституту ім. П.Н. Лебедєва РАН [1]. Як джерело релятивістських електронів використовувався мікротрон з енергією прискорених електронів 7 MeV. Основні зусилля при створенні та модернізації установки були спрямовані на зниження небажаного фону супроводжуючого рентгенівського випромінення з метою максимального покращення відношення «сигнал ПРВ – загальний радіаційний фон». У результаті виконаних робіт вдалося досягти значень корисного сигналу, які досягали 3% від рівня фону, тоді як в інших

лабораторіях корисний сигнал не перевищував 1%, а у ряді експериментів взагалі не виділявся з фону.

Принципова схема комплексу «Рентген 1» наведена на рис. 2.1. Вона містить наступні основні елементи: 1 – мікротрон (ПЕ); 2 – електронний пучок; 3 – коліматори електронного пучка; 4 – поворотні магніти (М1, М2, М3); 5 – квадрупольні магнітні лінзи; 6 – коректор; 7 – вакуумний затвір; 8 – мішень (М); 9 – гоніометр; 10 – пропорційна камера (ПК); 11 – циліндр Фарадея; 12 – напрямок вимірювання ПРВ; 13 – коліматори; 14 – детектор (Д); 15 – свинцевий радіаційний захист. Елементи схеми можна об'єднати у основні функціональні групи: блок формування пучка (елементи 1 – 6); блок гоніометру з мішенню (7 – 9); блок реєстрації рентгенівського випромінення (13, 14); блок моніторингу струму пучка (10, 11). Для ілюстрації будови комплексу «Рентген 1» на рис. 2.2 та 2.3 представлено фотографії установки, отримані у різних ракурсах. Розміри основних елементів, вказаних на рис. 2.2 та рис. 2.3, наступні: відстань М1 – М2 складає 2,6 м; відстань М2 – М3 – 2,8 м; відстань М3 – мишень – 0,8 м; відстань мишень – пропорційна камера – 0,52 м; відстань між коліматорами пучка електронів – 1,5 м.

Комплекс функціонує наступним чином: у мікротрон (1) вводиться пучок електронів (2), прискорюється у ньому до енергії 7 МеВ і випускається у загальний з синхротроном канал. Мікротрон генерує структурований у часі пучок електронів з частотою проходження імпульсів 50 Гц при тривалості імпульсу до 4 мкс, струм пучка (в імпульсі) – до 35 мА. Структура кожного імпульсу визначається банчами довжиною близько 1 см з просторовою періодичністю 10 см, (див. Рис. 2.1. – 2. 16 у роботі [126]). Перший поворотний магніт (М1) спрямовує пучок у канал установки «Рентген 1», де

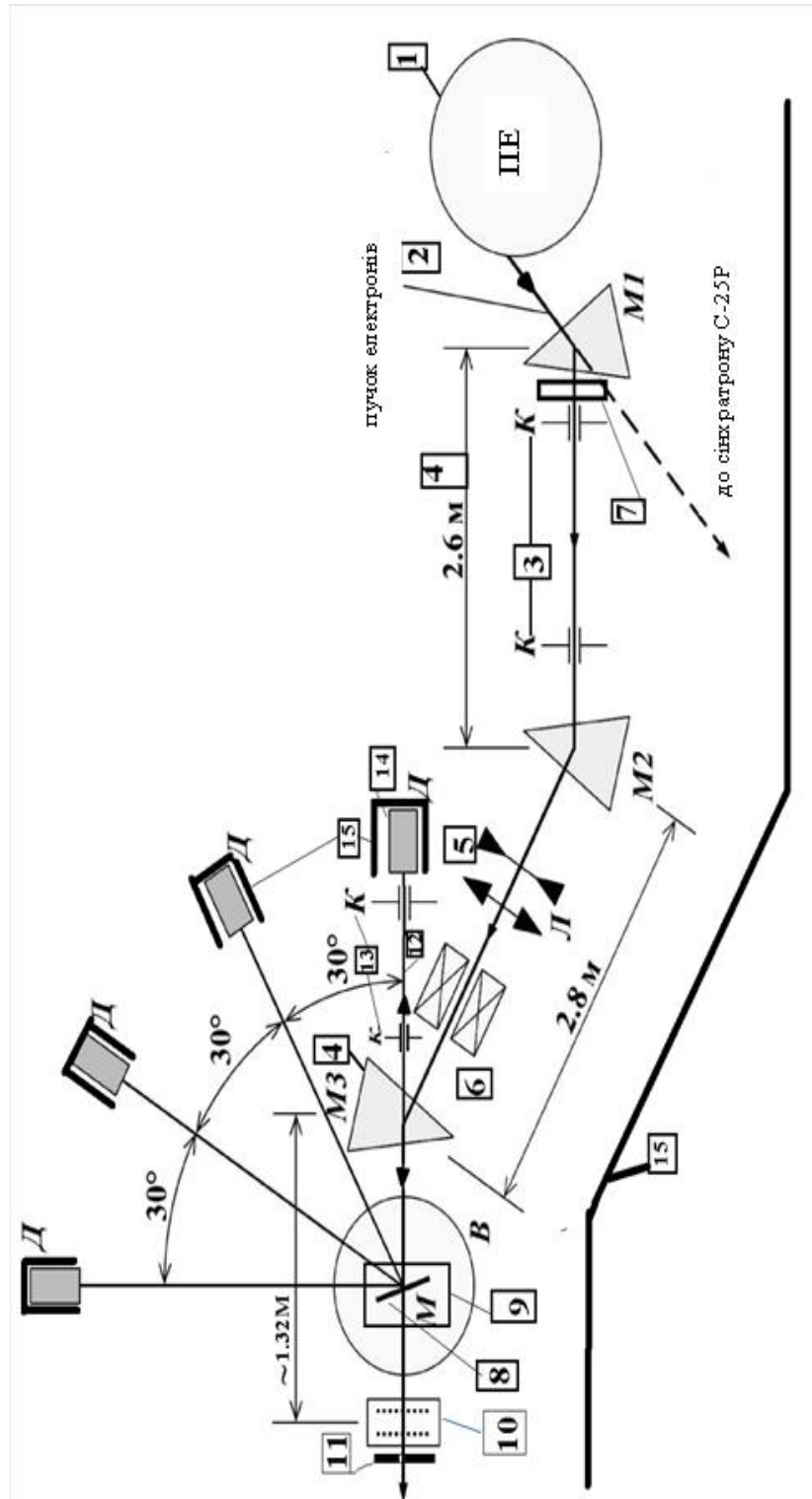


Рис. 2.1. Принципова схема експериментального комплексу «Рентген 1» (пояснення у тексті).

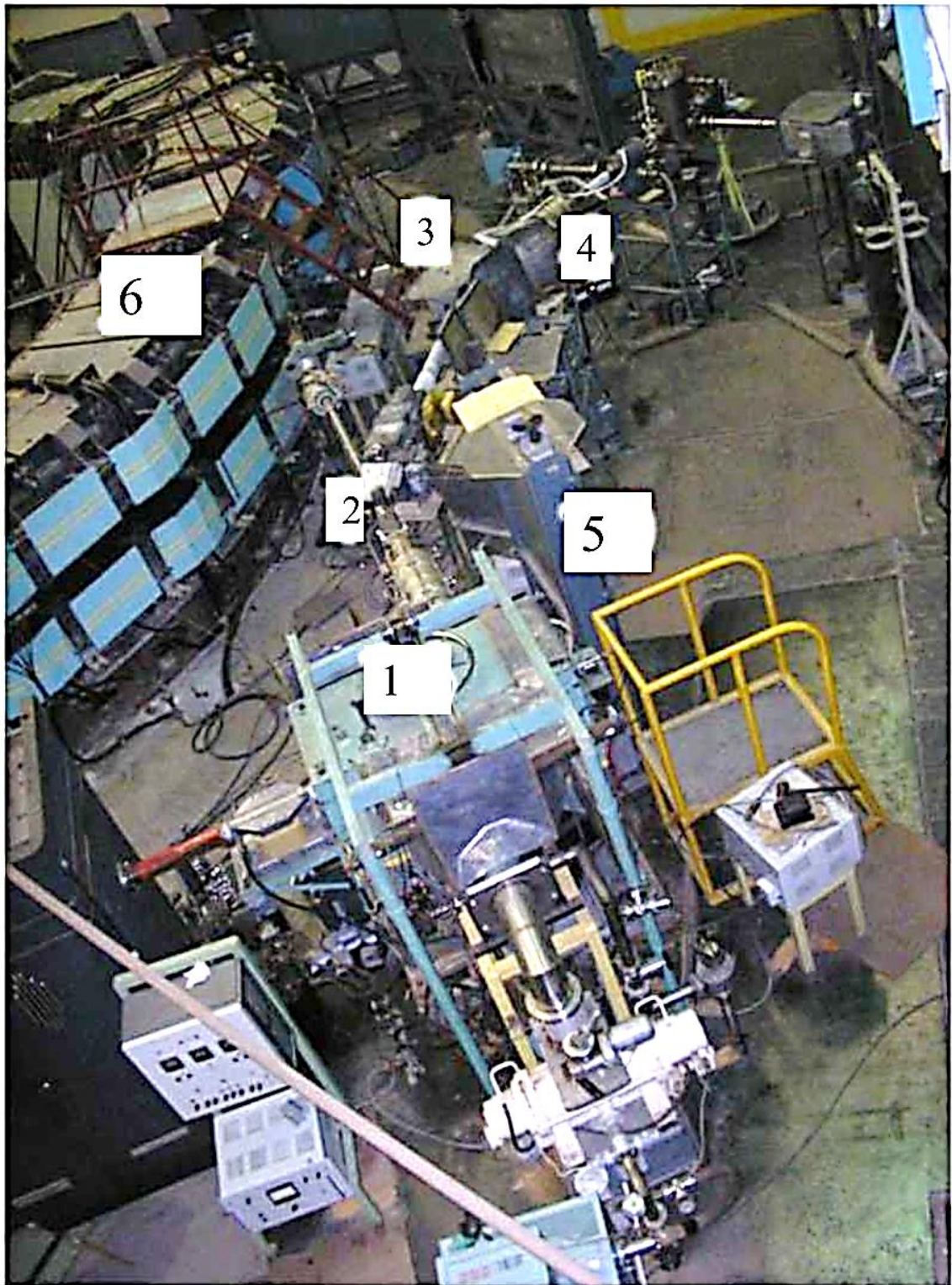


Рис. 2.2. Експериментальна установка «Рентген 1», вигляд з боку мікротрона: 1 – мікротрон; 2,3 – поворотні магніти; 4 – квадрупольні лінзи; 5 – свинцева захист; 6 – синхротрон.

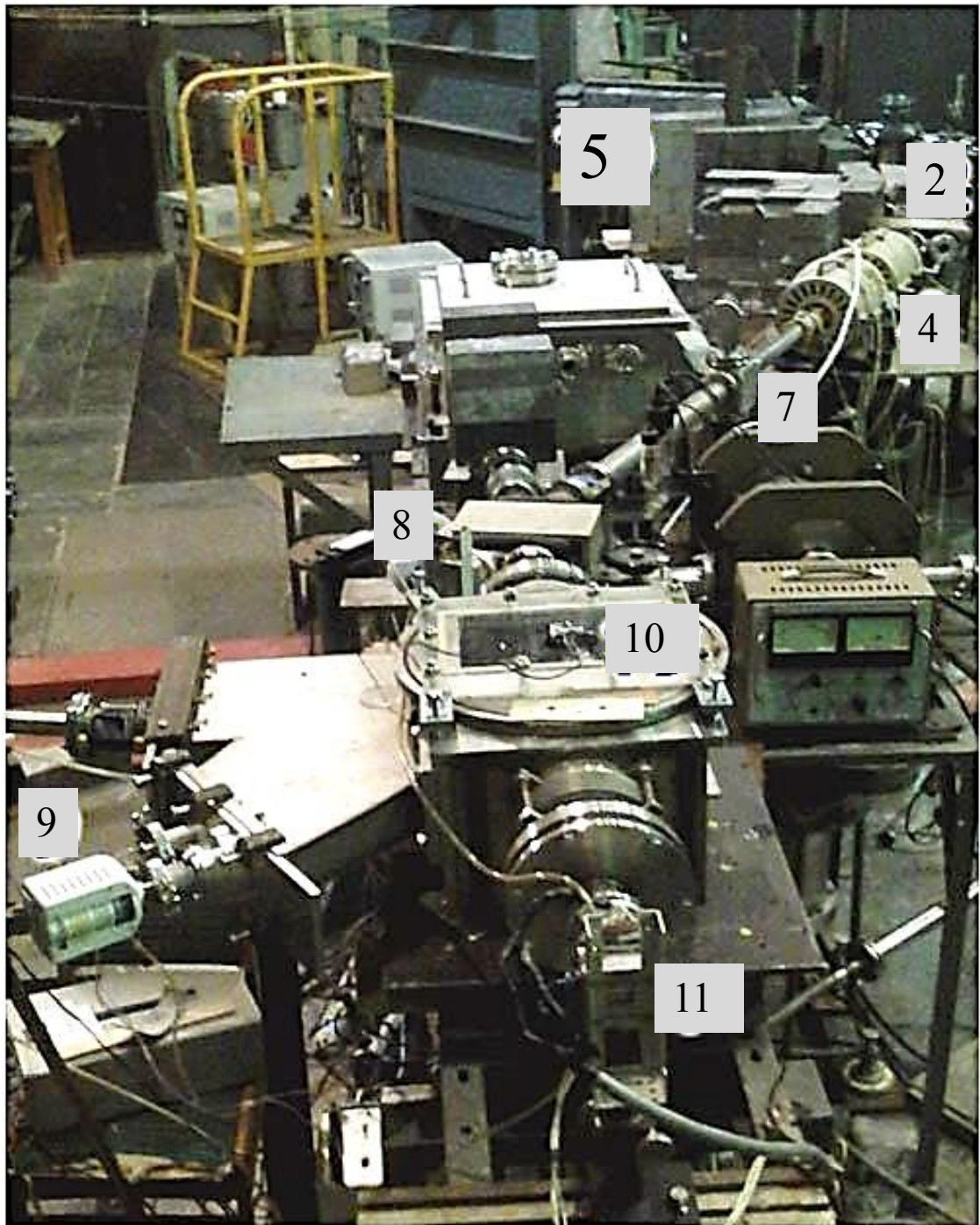


Рис. 2.3. Експериментальна установка «Рентген 1», вигляд з боку камери мішені з гоніометром: 2,8 – поворотні магніти; 4 – квадрупольні лінзи; 5 – свинцевий захист; 7 – коректор; 9 – вакууметр; 10 – камера гоніометру та мішені; 11 – пропорційна камера.

він обмежується двома вуглецевими коліматорами (3) з апертурою 5 мм і відстанню 1,5 м один від одного. За допомогою коліматорів забезпечується необхідна кутова розбіжність пучка, але при цьому інтенсивність пучка електронів зменшується майже на три-чотири порядки. Крім того, взаємодія пучка з матеріалом коліматорів призводить до вкрай негативного побічного ефекту - генерації інтенсивного фонового гальмівного і характеристичного рентгенівського випромінювання. Істотний внесок у фонове випромінювання дають і рентгенівські промені, які виникають у результаті взаємодії розсіяних електронів зі стінками електронопровода і свинцевим захистом установки. Нарешті, не менш важливим джерелом інтенсивного радіаційного фону є сам мікротрон, від якого фонове випромінювання розповсюджується у площині електронних орбіт. Сумарне фонове випромінювання поширюється у конусі з кутом розвору близько 30° , вісь якого збігається з напрямком розповсюдження пучка. Відзначимо, що вибір графіту як матеріалу коліматоров зумовлений низькою енергією характеристичного рентгенівського випромінювання графіту та його високою електропровідністю. Для максимально можливого зниження впливу фонового випромінювання на систему реєстрації ПРВ використовується другий поворотний магніт (M2), який відхиляє пучок на заданий кут, виводячи його з області конусу радіаційного фону. У підсумку магніт (M2) переспрямовує електронний пучок в інший канал - магнітооптичний канал. До складу останнього входить дві пари квадрупольних магнітних лінз (5), а також електричний коректор (6), які формують пучок необхідної форми.

При дослідженні ПРВ від мішені у геометрії зворотнього розсіювання використовується третій поворотний магніт (M3). З його допомогою виконується перенаправлення електронного пучка у камеру гоніометра і мішені та забезпечується юстування пучка, при якому встановлюється кут 180° між напрямком розповсюдження пучка та напрямком розповсюдження ПРВ від мішені (8) до детектора (14). Мішень закріплюється у гоніометрі з трьома ступенями вільності (9) та можливістю пересування як уздовж

напрямку пучка, так і перпендикулярно до цього напрямку. У табл. 2.1 наведено основні характеристики системи формування електронного пучка в приладі «Рентген 1».

Таблиця 2.1

Функціональне призначення елементів магнітної оптики установки
«Рентген 1»

Елемент	Функціональне призначення
Перший поворотний магніт (M1)	<ul style="list-style-type: none"> - перенаправлення пучка електронів з вакуумного каналу у тракт установки «Рентген 1»; - зменшення інтенсивності електронного пучка; - первинне формування пучка;
Другий поворотний магніт (M2)	<ul style="list-style-type: none"> - відхилення пучка від конусу радіаційного фону; - регулювання просторового положення пучка відносно горизонтальної осі; - визначення точки входу до третього поворотного магніту;
Третій поворотний магніт (M3)	<ul style="list-style-type: none"> - спрямування пучка електронів у мішень і регулювання його положення відносно горизонтальній осі;
Квадрупольні лінзи (5)	<ul style="list-style-type: none"> - фокусування і контроль розбіжності пучка електронів;
Коректор (6)	<ul style="list-style-type: none"> - регулювання положення електронного пучка відносно вертикальної осі

Для контролю характеристик пучка передбачені додаткові вікна, за допомогою яких виконується вимірювання просторового положення і параметрів струму пучка. Визначення положення пучка у перерізі

електронопроводу виконується проточною газонаповненою пропорційною камерою (10). Виведення пучка до пропорційної камері здійснюється через майларове вікно товщиною 100 мкм. Струм пучка вимірюється циліндром Фарадея (11) та пікоамперметром Keithley 6487. Після проходження через вуглецеві коліматори усереднений струм у робочому режимі складає близько 20 нА.

ПРВ, яке генерується у мішені (8), проходить шлях (12) через коліматор (13) до детектора (14). Для захисту від радіаційного фону на детектор встановлено свинцевий захист (15). Вакуумна система мікротрону та камери гоніометру і мішеней є спільною, а для розділення цих двох модулів встановлено затвор (7). Система створення вакууму є комбінацією пластинчато-роторного, турбомолекулярного і магніторозрядного насосів. Вакуум у системі мікротрона складає 10^{-7} торр, у камері гоніометру та мішеней 10^{-6} торр. У ході експерименту вакуум у різних частинах установки вирівнюється.

Розглянемо більш детально будову та функціонування основних блоків експериментальної установки «Рентген 1».

Камера мішені. Для дослідження характеристик ПРВ було виготовлено високотехнологічну вакуумовану камеру, яка дозволяє спостерігати за процесом взаємодії електронного пучка з речовиною на всіх етапах експерименту та вимірювати спектрально-кутові характеристики ПРВ у широкому діапазоні кутів спостереження. Для цього у горизонтальній площині камери було спроектовано вакуумні порти в інтервалі кутів $15 - 80^\circ$ відносно напрямку поширення пучка, а також порт у напрямку пучка для виведення електронів із зони реакції до приладів, які визначають характеристики пучка (пропорційна камера, циліндр Фарадея, пікоамперметр). На виході порту встановлювався майларове вікно товщиною 100 мкм. Загальний вигляд камери мішені наведено на рис. 2.4.

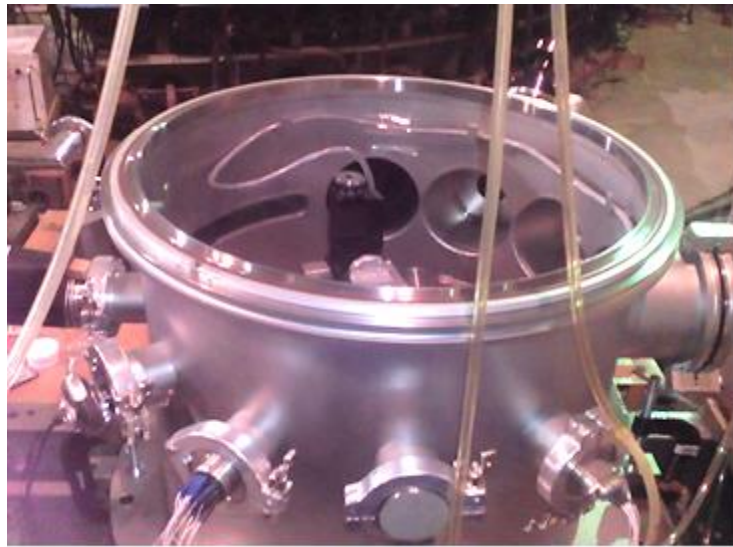


Рис. 2.4. Загальний вигляд камери мішені приладу «Рентген 1».

Гоніометр. У камері мішені встановлено гоніометр, на якому закріплюється зразок. Для управління орієнтацією мішені відносно напрямку пучка електронів передбачено:

- обертання відносно вертикальній осі - крок 71 мкрад, діапазон кутів $\pm 6^\circ$;
- обертання відносно горизонтальній осі, яка проходить під кутом 90° до нормалі, що поведена до площини поверхні мішені - крок 50 мкрад, діапазон кутів $\pm 8^\circ$;
- обертання відносно осі, що збігається з нормаллю до площини поверхні мішені - крок $0,1^\circ$, діапазон кутів $0 - 360^\circ$;
- рух гоніометру як цілого уздовж вертикального діаметру камери, діапазон переміщень ± 10 см;
- рух гоніометру як цілого уздовж горизонтального діаметру камери, діапазон переміщень ± 15 см.

Орієнтація мішені у гоніометрі задається за допомогою режиму дроблення кроку, а саме, 0,5; 0,25 та 0,125 від повного кроку. Абсолютна похибка у режимі повного кроку при горизонтальному переміщенні складає не більше 2,5 мкм, а при обертанні - не більш $0,01^\circ$. Електропривод обертання та

переміщення забезпечується електродвигунами 8MT175V (22) і 8MR191V (23) компанії Standa. Загальний вигляд гоніометру представлено на рис. рис. 2.5а, та 2.5б.

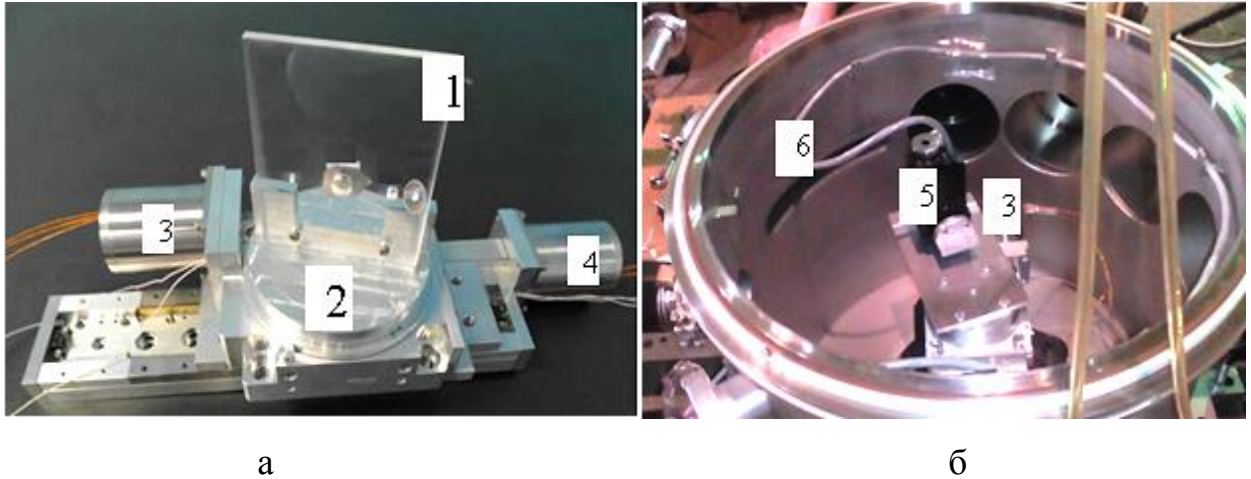


Рис. 2.5. Гоніометр. До встановлення у камері (а): 1 – пластинка з оргскла для закріплення мішені; 2 – основа, що обертається відносно вертикальної осі ; 3 – двигун 8MR191V, що здійснює обертання основи (2); 4 – лінійний транслятор 8MT175V, що рухає гоніометр уздовж діаметру камери. Встановлено у камері (б): 5 – двигун, що здійснює обертання мішені відносно горизонтальної осі; 6 – електрична проводка для дистанційного контролю пристрою.

Вакуумна система. Вакуумна система в установці «Рентген 1» сполучається з вакуумною системою мікротрона. Як зазначалося, отримання високого вакууму в установці «Рентген 1» забезпечується роботою комплексу з турбомолекулярного високовакуумного насосу та форвакуумного пластинчато-роторного насосу. Тиск у вакуумній системі контролюється вакуумметром Televac CC-10 і підтримується на рівні $1,33322 \cdot 10^{-4}$ Паскаль (даний вакуумметр дозволяє проводити вимірювання від атмосфери до високого вакууму порядку $1,33322 \cdot 10^{-7}$ Паскаль). Вакуум у мікротроні створюється за допомогою форвакуумного, турбомолекулярного

та електророзрядного насосів. Вакуумний об'єм установки «Рентген 1» відокремлюється від мікротрону затвором (рис. 2.3 (7)). Тиск у мікротроні становить 10^{-7} Паскаль, а при відкритому затворі тиск вирівнюється.

Блок рентгенівської спектрометрії. Аналіз умов генерації та дифракції ПРВ з використанням установки «Рентген 1» показав, що при розповсюдженні у зразку електронів з енергією 7 МеВ має спостерігатися ПРВ з енергією фотонів 1 – 10 кеВ у вигляді окремих піків на фоні неперервного гальмівного випромінення. Згідно з характеристиками мікротрону мінімальна скважність пучку складає 5000 при тривалості імпульсу до 4 мкс, що вимагає швидкодії детектора, не гіршої за 10^5 подій за секунду. За таких умов величина корисного сигналу має бути не меншою за 1% від рівня загального радіаційного фону (фону установки та фону мішені разом), а енергетичне розділення складатиме 300 еВ. Очевидно, за умов інтенсивного радіаційного фону недоцільно використовувати багатоканальний детектор. З цієї ж причини варто використовувати детектор з малим об'ємом реєструючого елементу.

Урахування вказаних факторів показує, що для реєстрації ПРВ у діапазоні енергій фотонів 1 – 10 кеВ оптимальним є детектор із швидкість рахування імпульсів, не меншою, ніж $10^5 - 10^6$ імпульсів за секунду, енергетичним розділенням, не гіршим за 150 – 200 еВ, та достатньо малим об'ємом реєструючого елемента (порядку 1 мм^3), що забезпечує ефективність реєстрації фотонів, близьку до 100%. Таким вимогам цілком відповідають напівпровідникові PIN детектори, на базі яких і було створено блок рентгенівської спектроскометрії комплексу «Рентген 1». Зокрема, використовувалися детектори Amptek XR100–CR та Amptek XR100–SDD з основними характеристиками [127,128]:

- | | |
|-------------------------------|--|
| - розміри кристалу (Si) | -25 мм x 500 мкм; |
| - товщина вхідного вікна (Be) | -12,5 мкм; |
| - площа вхідного вікна | - 25 мм^2 – колімовано до $21,5 \text{ мм}^2$ (CR), 17 мм^2 (SDD); |

- розділення (в області 5,9 кеВ) - 125 – 139 еВ;
- оптимальний діапазон енергій фотонів - 1 – 12 кеВ;
- швидкість рахування - до $2 \times 10^6 \text{ с}^{-1}$;
- ефективність (в області 1-12 кеВ) - більше за 70–100 %.

Також використовувався детектор Amptek X123 SDDFAST з наступними характеристиками [128,129]:

- розміри кристалу (Si) - 25 мм x 500 мкм;
- товщина вхідного вікна (Be) - 12,5 мкм;
- площа вхідного вікна - 25 мм^2 (коллімировано до 17 мм^2);
- розділення (в області 5,9 кеВ) - 139 – 260 еВ;
- оптимальний діапазон енергій фотонів - 1 – 40 кеВ
- швидкість рахування - до $2 \times 10^5 \text{ с}^{-1}$;
- ефективність (в області 1,5 -25 кеВ) - більше за 25%.

Такі детектори забезпечують високу швидкість реєстрації імпульсів та термоелектричне охолодження реєструючої речовини детектора, що дозволяє виконувати дослідження при інтенсивному радіаційному фоні і високої скважності електронного пучку.

Однак, необхідно відзначити, що вказані детектори не позбавлені певних недоліків. Головний з них - наявність фантомних піків або піків вильоту (ESC-піків), які зумовлені непружним розсіюванням фотонів ПРВ у сенсорі детектору зі збудженням $K\alpha$ флуоресцентного випромінення кремнію з енергією $E\alpha=1,74 \text{ кеВ}$. Згідно [130], інтенсивність піків вильоту у кремнієвих детекторах вказаних типів менша за інтенсивність основного піку у 50 – 100 раз. Важливо також, що у детекторах Amptek XR100–CR та Amptek XR100–SDD відсутній крайовий ефект, оскільки краї кремнієвих сенсорів закриті коліматорами, встановленими виробником.

Обробка сигналів детекторів виконувалася з використанням електронного обладнання для PIN детекторів, що включає первинний

дискримінатор, підсилювач-формував, аналогово-цифровий перетворювач і багатоканальний амплітудний аналізатор імпульсів. Усі основні налаштування детекторів задавалися та контролювалися за допомогою програми набору і статистичної обробки сигналів, що дозволяло істотно варіювати режими роботи детекторів при вимірюваннях у різних схемах експерименту. При проведенні вимірювань детекторами Amptek XR100–CR та Amptek XR100–SDD обробка сигналів виконувалася блоком спектроскопічної електроніки Amptek PX4, у якому передбачено можливість зміни часу формування імпульсу.

Для зменшення радіаційного фону детектори були додатково захищені свинцевими пластинами. Крім того, для усунення фону від внутрішньої поверхні каналу спектроскопії – сильно колімовані. Зокрема, перед кожним детектором встановлювалися вольфрамові коліматори товщиною 2 мм. Діаметр отворів коліматорів підбирався таким, щоб у детектор не потрапляв радіаційний фон, який утворюється в результаті взаємодії розсіяних електронів і рентгенівського випромінювання зі стінками камери мішені і тракту проходження електронного пучка. При цьому вхідний отвір детектору спостерігався із зразку у тілесному куті $1,7 \cdot 10^{-7}$ стерadian.

Важливою характеристикою PIN детектору є залежність енергетичного розділення від енергії фотонів, що реєструються. Для детекторів, що використовувалися у даній роботі. Така залежність визначається формулою (2.1) [128,131]:

$$\Delta W[\text{эВ}] = \sqrt{((\Delta W_{5,9\text{кэВ}}[\text{эВ}])^2 - 14400 + 2440E[\text{кэВ}])}, \quad (2.1)$$

де ΔW – розділення детектора (в електронвольтах) в області енергії фотонів E (вираженої у кеВ); ΔW_{Fe} – розділення детектора (в електронвольтах) при енергії квантів $K\alpha$ випромінювання Fe, $E_{Fe} = 5,9$ кеВ. При енергії $E_{Fe} = 5,9$ залежно від типу детектора складає 145 – 250 еВ (див. рис. 2.6). Для

детекторів, які використовувалися у даній роботі, розділення складало 130 – 140 еВ.

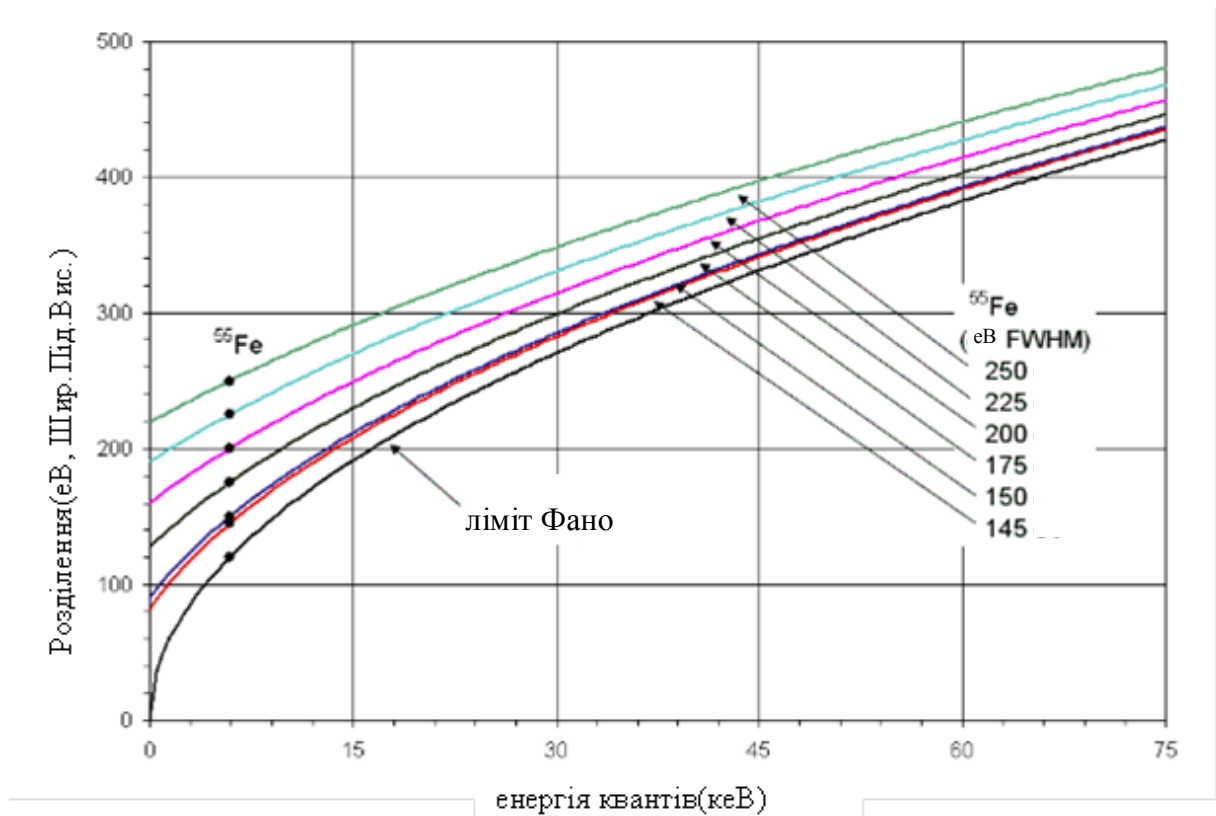


Рис. 2.6. Розділення детектора як функція енергії фотонів для різних значень ΔW_{Fe} [129].

Далі необхідно відзначити і деякі **допоміжні пристрої**, які відіграють важливу роль у підготовці та проведенні експерименту.

Пропорційна камера використовується для визначення положення електронного пучка у просторі. Конструктивно вона має вхідне вікно для електронного пучка (32 x 32 мм), виготовлене з майлару товщиною 100 мкм, дві сигнальні площини, на кожную з яких горизонтально та вертикально намотані вкриті золотом вольфрамові дротини діаметром 20 мкм з кроком намотування 2 мм, а також чотири високовольтні площини, на які намотано дріт з берилієвої бронзи діаметром 80 мкм з кроком 1 мм; відстань між площинами складає 3 мм. Як робочий газ використовується суміш аргону з вуглекислим газом у співвідношенні 3:2. Камера дозволяє визначати

координати пучка у поперечному перерізі електронопровода з точністю до 1 мм.

Відеокамера використовується для визначення положення електронного пучка відносно мішені і закріплюється на верхній частині камери мішені. Для фіксації положення пучка використовується випромінювання Вавилова-Черенкова, яке генерується при взаємодії електронів з утримувачем мішені, що виготовлений з оргскла. Використовується той відомий факт, що для виникнення випромінювання Вавилова-Черенкова заряджена частинка повинна рухатися у речовині зі швидкістю, більшою за фазову швидкість світла у цій речовині. При енергії електронів 7 MeV їх швидкість складає $2,991 \cdot 10^8$ м/с, тоді як для довжини хвилі 470 нм (показник заломлення оргскла для цієї довжини хвилі дорівнює 1,498 [132]) швидкість світла в оргсклі дорівнює $2,001 \cdot 10^8$ м/с. Важливо, що у результаті розсіювання випромінювання Вавилова-Черенкова в оргсклі блакитне світіння помітне при різних кутах спостереження і реєструється відеокамерою. Вказаний спосіб визначення положення електронного пучка особливо зручний при зміні геометрії експерименту, тобто, при перестановці вакуумного каналу, заміні магнітів тощо, оскільки у таких випадках іноді виникають складнощі у пошуку електронного пучка за допомогою пропорційної камери, яка має досить обмежені розміри робочої області.

Таким чином, для проведення досліджень спектрально-кутових характеристик ПРВ при розповсюдженні високоенергетичних електронів (з енергією 7 MeV) у кристалах було створено експериментальну установку «Рентген 1» та відпрацьовано методику виконання таких досліджень.

2.2. Методика проведення експерименту зі збудження та реєстрації ПРВ

На першому етапі експерименту необхідно отримати пучок електронів, який повинен мати задані геометричні та струмові характеристики і

безперешкодно розповсюджуватися від мікротрону до мішені. Тому спочатку при виведеному з робочого положення зразку пучок подається у пропорційну камеру, де визначаються його параметри. Далі виконується юстування системи. Для цього використовується наступний метод: пластина з оргскла розміщується у гоніометрі на місці зразку, після чого пучок електронів пропалює у пластині точку, по якій виробляється отвір діаметром 2 мм. Друга пластина з оргскла розміщується за першою, електронний пучок проходить через двоміліметровий отвір і пропалює точку в другій пластині. На місці другої точки також виробляється отвір діаметром 2 мм. Через створені отвори проводиться лазерний промінь, що дозволяє уточнити геометрію зворотного розсіювання. Зокрема, по лазерному променю виставляються вісь коліматорів та вікно детектору. Це дозволяє добитися збігу осі реєстрації ПРВ з віссю пучка електронів з точністю, не гіршою за $\pm 0,2^\circ$. Якщо при проходженні пучка через двоміліметровий отвір випромінення Вавилова–Черенкова не спостерігається, можна стверджувати, що поперечний розмір електронного пучка менший за діаметр зробленого отвору і в конкретній геометрії приладу розбіжність пучка електронів не перевищує 5 мрад.

Налаштування положення мішені також здійснювалося за допомогою лазерного променя. Лазер розміщувався за отвором коліматора, через який проходить пучок електронів, а замість мішені встановлювалося дзеркало для відбивання променя у напрямку детектора. За допомогою системи обертань та переміщень, яка розглядалася вище, досягалося таке положення мішені, при якому лазерний промінь проектувався на вхідне віконце детектора. Після зняття дзеркала встановлювалася мішень. Зазначимо, що для отримання достовірних експериментальних результатів важливу роль відіграють розміри, форма та стан кристалічної структури мішені. Зокрема, використання товстих мішеней призводить до їх сильного нагріву та суттєвого самопоглинання генерованого ПРВ в об'ємі зразку. Тому залежно від матеріалу використовувалися мішені з товщинами 30 – 300 мкм, які є

оптимальними для відповідних умов експерименту Крім того, отримані результати залежать від того, використовуються моно- чи полікристалічні зразки, а в останньому випадку, наявна чи відсутня текстура у зразках.

Загальне керування експериментом здійснюється з окремої кімнати, до якої підведено кабелі, що з'єднують головний комп'ютер з приладами управління системами експериментальної установки та контролю за їх станом. Це дозволяє оперативно відслідковувати хід експерименту, а у разі необхідності – змінювати його режими; отримувати експериментальні результати у цифровому вигляді та обробляти їх за допомогою пакету спеціальних програм.

Відзначимо, що з моменту створення експериментальна установка «Рентген 1» постійно вдосконалювалася, зокрема, модернізувалися гоніометр, вакуумна система, замінювалися детектори на більш досконалі тощо. Це дозволило суттєво розширити коло експериментальних задач, розв'язок яких є доступним для цього приладу і, зокрема, виконати експериментальні дослідження представленої дисертаційної роботи. На сьогодні експериментальний комплекс "Рентген 1" модернізується для виконання досліджень спектрів випромінювання мішеней в області вакуумного ультрафіолету і м'якого рентгенівського випромінювання (100 – 1000 eV), а також в області жорсткого рентгенівського випромінювання (10 – 100 keV). Це дозволить виконувати дослідження генерованого поляризаційного рентгенівського випромінювання у наноструктурованих і аморфних середовищах та дифрагованого випромінювання Вавилова-Черенкова у шаруватих середовищах.

2.3. Методика збудження та реєстрації характеристичних рентгенівських $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$ спектрів елементів $13 \leq Z \leq 24$ при електронному бомбардуванні

Дослідження інтенсивності та структури $K\alpha$ -спектрів Al, Ti, V, Cr при електронному бомбардуванні виконувалося з використанням електронної гармати приладу ЕММА-2 та модернізованого Бреґгівського спектрометра. Зокрема, рентгенівські емісійні $K\alpha$ -спектри Al при електронному збудженні у діапазоні прискорюючих напруг $U = (4,5 - 100)$ кВ було за допомогою Бреґгівського спектрометра з вигнутим за Іоганом монокристалом кварцу ($10\bar{1}0$) у першому порядку відбивання. Особливість спектрометра є такою, що повне фокусування за Іоганом виконується лише у досить вузькому кутовому діапазоні $\Delta\theta(\alpha_i - \alpha_j) \leq 1^\circ$. Цього достатньо для практично неспотвореної реєстрації ділянки спектру $K\alpha_{1,2} - K\alpha L^1$, але сканування більш протяжного спектрального діапазону як однієї ділянки стає вже неможливим. Тому $K\alpha$ -спектр Al, який містить окрім діаграмних ліній ще й групи сателітів сателіти $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$, поділявся на три інтервали: $(K\alpha_{1,2} - K\alpha L^1)$, $(K\alpha L^1 - K\alpha L^2)$ та $(K\alpha L^2 - K\alpha L^3)$, в межах кожного з яких задовольнялися умови повного фокусування. Для кожного з інтервалів визначалися кути повного фокусування $\theta_a(\alpha_1 - \alpha_4)$, $\theta_a(\alpha_4 - \alpha_6)$ та $\theta_a(\alpha_6 - \alpha_9)$, які визначають центри фокусування при зйомці відповідної ділянки. Для кожного кута θ_a кристал-аналізатор вигинався за своїм радіусом кривизни $R = l / \sin \theta_a$ ($l = 275$ мм). Спектри реєструвалися в режимі покрокового сканування з кроком $\Delta\theta = (0,01 - 0,02)^\circ$ що відповідає кроку по енергії в області $K\alpha_{1,2}$ -ліній $\Delta E = (0,19 - 0,38)$ еВ та в області $K\alpha L^3$ $\Delta E = (0,23 - 0,46)$ еВ. Час накопичення імпульсів у точці був різним залежно від

інтенсивності ділянки і складав $\tau = (1 - 50)$ с. При зйомці $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V, Cr використовувалися кристали кварцю $(10\bar{1}0)$, $(10\bar{1}1)$, $(11\bar{2}0)$.

Необхідно також відзначити, що було суттєво удосконалено систему керування електронною гарматою завдяки введенню у схему підвищуючого трансформатора додаткового стабілізованого подільника напруги. Це дозволило в області напруг $4,5 \leq U \leq 25$ кВ змінювати прискорюючу напругу з кроком 1 кВ і підтримувати її з точністю до 0,5%. При цьому система додаткового регулювання струмів першого та другого конденсорів забезпечувала діаметр зонда на поверхні зразка до 50 мкм при підвищеній стабільності струму розжарення катоду; тиск у системі підтримувався на рівні $1,33322 \cdot 10^{-3} - 1,066576 \cdot 10^{-3}$ Паскаль. Ділянка $K\alpha_{1,2}$ – ліній в області кутів θ біля максимуму $K\alpha_1$ – лінії для Al, Ti, V, Cr реєструвалася з поглиначем, коефіцієнт поглинання якого підбирався таким, щоб інтенсивність у максимумі зменшувалася до 10^4 імп/с, і ретельно визначався з відносною похибкою до 0,5%. Це дозволяло мінімізувати втрати інтенсивності за рахунок "мертвого часу" пропорційного чи сцинтиляційного лічильника разом з відповідним АЦП.

При подальшій обробці спектрів вводилися наступні корекції:

1. Корекція на кутову залежність інтегрального коефіцієнта відбивання кристала-аналізатора, яка у кінематичному наближенні має вигляд [133,134]:

$$K_2(\theta) = \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin 2\theta} \right)^{-1}. \quad (2.2)$$

2.) Корекція на кутову дисперсію спектрометру при переході від шкали кутів у спектральному масиві до шкали енергій

$$K_3(\theta) = \frac{4d^2 \sin^2 \theta}{hc \cdot \cos \theta}, \quad (2.3)$$

де h – стала Планка, c – швидкість світла у вакуумі, d – міжплощинна відстань для даного сімейства площин кристала-аналізатора.

Висновки розділу 2

1. Для виконання досліджень спектрально-кутових характеристик ПРВ при розповсюдженні високоенергетичних електронів з енергією 7 МеВ у кристалах було створено експериментальну установку «Рентген 1», яка дозволяє реєструвати фотони ПРВ у діапазоні енергій 1 – 10 кеВ.

2. Для зниження радіаційного фону та покращення відношення сигнал/фон розроблено методику реєстрації ПРВ у геометрії зворотнього розсіювання, зокрема, в області кутів спостереження $150^\circ - 180^\circ$ відносно напрямку розповсюдження електронного пучка. Це дозволило забезпечити рівень сигналу 1 – 3% від рівня загального радіаційного фону, що достатньо для достовірної реєстрації спектрів ПРВ при відповідному виборі часу накопичення у каналі реєстрації.

3. Відпрацьовано методику збудження та реєстрації характеристичних рентгенівських $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ спектрів елементів $13 \leq Z \leq 24$ при бомбардуванні електронами з енергіями 4,5 – 100 кеВ. Для забезпечення роздільної здатності спектрометрів, достатньої для достовірного поділу $K\alpha$ спектрів як на окремі групи ліній, що відповідають різній кратності іонізації атомів, так і на окремі компоненти у межах кожної групи ліній, використовувався хвильовий спектрометр з кварцовими кристалами-аналізаторами.

РОЗДІЛ 3. СПЕКТРАЛЬНО-КУТОВІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПАРАМЕТРИЧНОГО РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЕННЯ У КРИСТАЛАХ ПРИ РІЗНИХ УМОВАХ ГЕНЕРАЦІЇ ТА ДИФРАКЦІЇ

У даному розділі наведено результати дослідження параметрів спектрального та кутового розподілів ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів у різних твердотільних середовищах. Зокрема, теоретично розглянуто рух електронів у тонких шарах речовини при зменшенні кута ковзання і з'ясовано характер змін характеристик конусу ПРВ за таких умов. Експериментально визначено відносні інтенсивності та ширини ряду максимумів ПРВ при дифракції на кристалографічних площинах мікророзмірних кристалів алмазу, досліджено залежності цих параметрів від середніх розмірів кристалітів. У геометрії зворотнього розсіювання (кут спостереження 180°) експериментально визначено орієнтаційні залежності інтенсивності ПРВ при розповсюдженні електронів у монокристалічному кремнії та високоорієнтованому піролітичному графіті. Зроблено висновки щодо можливостей використання ПРВ як додаткового методу діагностики структури кристалів.

3.1. Особливості генерації параметричного рентгенівського випромінення при розповсюдженні релятивістських електронів у тонкому шарі речовини

У розділі 1 відзначалося, що важливою особливістю ПРВ є квазімонохроматичний спектр з відносно високою спектральною густиною при досить низьких енергіях частинок, які випромінюють (у даній роботі - електронів з енергіями 7 MeV), що дозволяє розглядати ПРВ як перспективне джерело рентгенівського випромінення [135,136]. Однак, при цьому недоліком ПРВ є досить низька кутова густина випромінення через значний кут розвору конусу випромінення. Тому для створення джерел інтенсивного

ПРВ, придатних до практичного використання, перш за все необхідно знайти спосіб збільшення кутової густини ПРВ. У роботах [137-139] для розв'язку такої задачі було запропоновано використати геометрію ковзаючого руху зарядженої частинки відносно поверхні мішені, що забезпечує трансформацію конусу ПРВ за рахунок збільшення довжини, з якої випромінюються фотони ПРВ при русі частинки. Важливо, що при ковзаючому русі кут розвору конуса суттєво зменшується, відтак, густина ПРВ повинна помітно зростати. Однак, у вказаних роботах розглядалася модель напівнескінченної мішені (товщина мішені більша за характерну довжину фотопоглинання). Недоліком цього підходу є багатократне розсіювання електронів у напівнескінченній мішені, яке супроводжується зміною напрямків руху частинки, зокрема, їх істотним відхиленням від ковзаючого напрямку. Очевидно, такий рух буде супроводжуватися розмиттям конусу ПРВ і послабленням очікуемого ефекту зростання кутової густини ПРВ.

У представленій дисертаційній роботі запропоновано інший підхід для забезпечення трансформації конусу ПРВ. А саме, розглядається рух електрона у мішені, яка являє собою тонкий шар речовини. Це дозволяє суттєво зменшити вплив багатократного розсіювання електронів і, крім того, взагалі пом'якшує умову розгляду руху електрона під малим кутом до поверхні.

3.1.1. Розрахунок амплітуди параметричного рентгенівського випромінювання у тонкому зразку

Розглянемо взаємодію електрона з шаром речовини товщиною L . Електрон рухається зі швидкістю \vec{V} ; ξ – кут ковзання по відношенню до площини поверхні, θ – кут відбору випромінювання відносно нормалі \vec{e}_\perp ; орт \vec{n} задає напрямок відбору випромінювання до детектора (рис. 3.1). Будемо

використовувати загальний підхід [140], який застосовується для розрахунку характеристик випромінювання релятивістських заряджених частинок ($\gamma \gg 1$). Крім того, врахуємо створення перехідного випромінювання, яке виникає, коли заряджена частинка проходить через межу розділу речовин з різною діелектричною проникністю [141], а також перевідбивання випромінювання від границі розділу середовищ. При розрахунках приймаємо $c = \hbar = m_e = 1$.

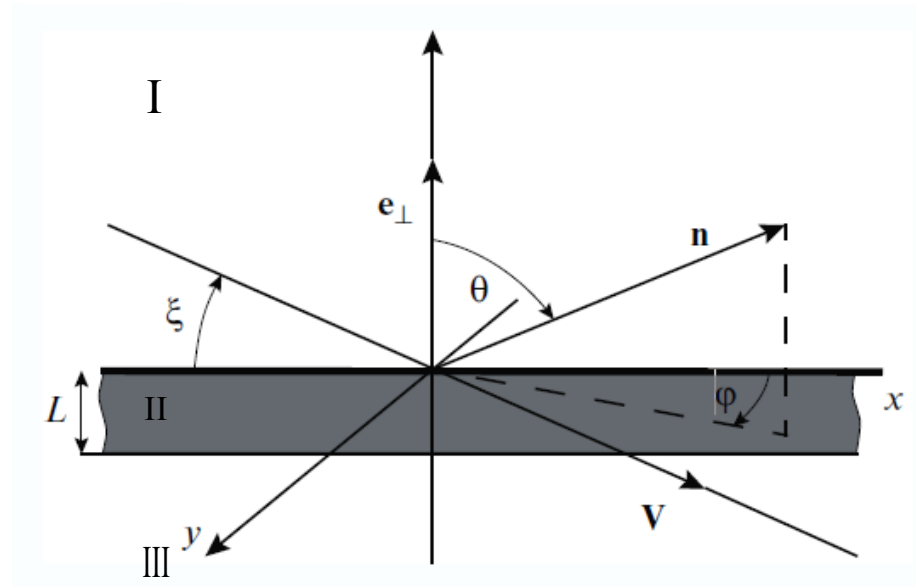


Рис. 3.1. Схема руху електрона та виходу ПРВ (пояснення у тексті).

Представимо напруженість електричного поля, що генерується релятивістським електроном, у вигляді інтегрального розкладу Фур'є

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega d\vec{k} \vec{E}_{\omega, k} e^{(i\vec{k}\vec{r} - \omega t)} \quad (3.1)$$

з наступними Фур'є-компонентами, що відповідають ділянкам простору I, II, III:

$$\vec{E}_{\omega k}^I = \frac{i\omega e}{2\pi^2} \frac{\delta(\omega - \vec{k}\vec{V})}{k^2 - \omega^2} \left(\vec{V} - \vec{k} \frac{\vec{k}\vec{V}}{\omega^2} \right) + \vec{a}_{k_{\parallel}} \delta(k_{\perp} - \sqrt{\omega^2 - k_{\parallel}^2}) \quad (3.2a)$$

$$\vec{E}_{\omega k}^{\text{II}} = \frac{i\omega e}{2\pi^2} \frac{\delta(\omega - \vec{k}\vec{V})}{k^2 - \omega^2 \varepsilon} \left(\vec{V} - \vec{k} \frac{\vec{k}\vec{V}}{\omega^2 \varepsilon} \right) + \vec{b}_{k_{\parallel}} \delta(k_{\perp} - \sqrt{\omega^2 \varepsilon - k_{\perp}^2}) + \vec{c}_{k_{\parallel}} \delta(k_{\perp} - \sqrt{\omega^2 \varepsilon - k_{\perp}^2}) \quad (3.26)$$

$$\vec{E}_{\omega k}^{\text{III}} = \frac{i\omega e}{2\pi^2} \frac{\delta(\omega - \vec{k}\vec{V})}{k^2 - \omega^2} \left(\vec{V} - \vec{k} \frac{\vec{k}\vec{V}}{\omega^2} \right) + \vec{d}_{k_{\parallel}} \delta(k_{\perp} - \sqrt{\omega^2 - k_{\perp}^2}), \quad (3.27)$$

де $\vec{a}_{k_{\parallel}}$, $\vec{b}_{k_{\parallel}}$, $\vec{c}_{k_{\parallel}}$ і $\vec{d}_{k_{\parallel}}$ – невідомі множники, що відповідають полю випромінювання, e – заряд електрона. Ці множники обчислюються з умови рівності тангенційних складових напруженості електричного поля у різних середовищах. У даній задачі характеристики поля в області I визначає множник $\vec{a}_{k_{\parallel}}$. У подальшому зручно розкласти вектор напруженості електричного поля за двома векторами поляризації $\vec{e}_1 = [\vec{k}_{\parallel}, \vec{e}_{\perp}]/k$ та $\vec{e}_2 = [\vec{e}_1, \vec{k}]/k$:

$$\vec{E}_{\omega, k} = \sum_{\lambda=1}^2 \vec{e}_{\lambda} (\vec{e}_{\lambda} \vec{E}_{\omega, k}) = \sum_{\lambda=1}^2 \vec{e}_{\lambda} E_{\lambda, \omega, k}. \quad (3.3)$$

Перехід від Фур'є-компонент $\vec{E}_{\omega, k}$ до амплітуди випромінювання виконується через інтегрування $A_{\omega} = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}_{\omega, k} d\vec{k} e^{i\vec{k}\vec{r}}$. Амплітуду ПРВ визначимо через поляризаційні компоненти: $\vec{A} = \vec{e}_1 A_{1, \omega} + \vec{e}_2 A_{2, \omega}$. Останні обчислюються методом стаціонарної фази [142] і у даній геометрії набувають наступного вигляду:

$$A_{1, \omega} = \frac{e}{\pi V_{\perp}} \vec{e}_1 \vec{V} \frac{\chi n_{\perp}}{(p^2 - n_{\perp}^2)(p^2 - \beta^2)} \times \frac{(\beta - p)(n_{\perp} - \beta)(1 - e^{i\Omega_+}) + (\beta + p)(n_{\perp} + \beta)(1 - e^{i\Omega_-})}{(\beta - n_{\perp})^2} \quad (3.4)$$

$$A_{2,\omega} = \frac{e}{\pi V_{\perp}} \frac{e_2 V}{\sqrt{n_{\parallel}^2 + p^2}} \frac{\chi n_{\perp}}{(p^2 - n_{\perp}^2)(p^2 - \beta^2)} \times$$

$$\frac{\left(\beta(n_{\parallel}^2 + p^2) - \varepsilon p\right)(\varepsilon n - \beta)(1 - e^{i\Omega_+}) + \left(\beta(n_{\parallel}^2 + p^2) + \varepsilon p\right)(\varepsilon n + \beta)(1 - e^{i\Omega_-})}{(\beta - n_{\perp})^2 e^{i\Omega_+} - (\beta + n_{\perp})^2 e^{i\Omega_-}} \quad (3.5)$$

$$\Omega_{\pm} = \frac{\omega L}{V_{\perp}} \left(1 - \vec{n}_{\parallel} \vec{V}_{\parallel} \pm V_{\perp} \sqrt{n_{\perp}^2 + \chi(\omega)}\right) \quad (3.6)$$

де $\beta = \sqrt{n_{\perp}^2 + \chi(\omega)}$, $p = \frac{1 - \vec{n}_{\parallel} \vec{V}}{V_{\perp}}$, $\chi(\omega)$ – діелектрична сприйнятливість

речовини. Тоді спектрально-кутовий розподіл випромінення визначається як

$$\frac{d^2 N}{d\omega d\Omega} = |A_{1,\omega}|^2 + |A_{2,\omega}|^2 \quad (3.7)$$

Відзначимо, що для практичних розрахунків у співвідношеннях (3.4) – (3.6) зручно перейти від векторних величин до кутових змінних:

$$\vec{V} = \vec{e}_{\perp} V \sin(\xi) + \vec{e}_x V \cos(\xi), \quad \vec{V}_{\parallel} = \vec{e}_x V \cos(\xi)$$

$$\vec{n} = \vec{e}_{\perp} \cos(\Theta) + \vec{e}_x \sin(\Theta) \cos(\varphi) + \vec{e}_y \sin(\Theta) \sin(\varphi) \quad (3.8)$$

$$\vec{n}_{\parallel} = \vec{e}_x \sin(\Theta) \cos(\varphi) + \vec{e}_y \sin(\Theta) \sin(\varphi)$$

3.1.2. Параметри конусу параметричного рентгенівського випромінення у тонкому зразку

Отримані співвідношення (3.4) та (3.5) для поляризаційних компонентів амплітуд дозволяють визначити характеристики ПРВ як при влітанні електрона у речовину ($V_{\perp} < 0$), так і при вильоті ($V_{\perp} > 0$). Проаналізуємо ці

співвідношення відповідно до цих двох випадків. У подальшому знак «+» у доданках та індексах величин відповідатиме режиму влітання електрону у речовину, а «-» – вильоту.

Перш за все, відзначимо, що при зменшенні товщини мішені $L \rightarrow 0$ функції $\Omega_{\pm} \rightarrow 0$, множники $(1 - e^{i\Omega_{\pm}}) \rightarrow 0$, отже, амплітуда ПРВ також прямує до нуля. Відповідно, при $L \rightarrow \infty$ співвідношення (3.4) – (3.6) набувають вигляду, отриманому у роботі [138] для напівнескінченної мішені. Взагалі, як видно з (3.4) – (3.6), умовою генерації ПРВ є виконання співвідношень:

$$p + \beta = 0 \quad (3.9a)$$

$$p - \beta = 0 \quad (3.9b)$$

причому умова (3.9a) відповідає влітання електрона у шар речовини, а умова (3.9b) – вильоту з речовини. Відтак, у першому випадку амплітуда ПРВ визначається множником $(1 - e^{i\Omega_+})$, а у другому випадку – множником $(1 - e^{i\Omega_-})$. Відзначимо, що інтерференційні ефекти при розсіюванні та генерації ПРВ та поверхнях шарів речовини враховуються функціями Ω_{\pm} .

Розв'язуючи рівняння (3.9a), (3.9b) з урахуванням наведених вище виразів для величин p та β , можна отримати вираз, який визначає кутове положення максимумів ПРВ:

$$\cos(\theta^{\pm}) = \left(\frac{\cos(\xi)}{V} \pm \sin(\xi) \sqrt{\varepsilon(\omega) - \frac{1}{V^2}} \right), \quad (3.10)$$

де $\varepsilon(\omega) = 1 + \chi(\omega)$. З рівняння (3.10) випливає, що при малих кутах ξ та релятивістських швидкостях електрона кут θ^{\pm} визначається другим доданком і тоді зменшення кута ξ супроводжується зменшенням $\cos(\theta^{\pm})$, отже, збільшенням кута θ^{\pm} . Як видно з рис. 3.1, зростання кута θ^{\pm}

відображує зменшення кута розтвору конусу ПРВ $\phi^{\pm} = \xi - \theta^{\pm} + \pi/2$. Таким чином, при русі електрона у шарі речовини спостерігається зменшення кута розтвору конусу ПРВ при зменшенні кута ковзання електрона по відношенні до площини поверхні.

Для повноти аналізу змін характеристик конусу ПРВ необхідно також визначити кутовий розподіл інтенсивності ПРВ при різних кутах ковзання та електронів, що розповсюджуються у тонкому шарі речовини. Такий розрахунок було виконано для карбонової мішені товщиною $L = 300$ нм при енергії електронів 10 МеВ та енергії фотонів ПРВ 0,284 кеВ ($\chi = 0,011$) як для випадку влітання електрона, так і при його вильоті із речовини. Було використано співвідношення (3.7) з відповідними значеннями для (3.4) – (3.6) для поляризаційних компонентів $A_{1,\omega}$ та $A_{2,\omega}$ амплітуди. На рис. 3.2 наведено результати розрахунку кутового розподілу ПРВ. Зокрема, на рис. 3.2а для випадку вильоту електрона представлено обчислену залежність величини $d^2N/d\omega d\Omega$ від кута ковзання: 1 – $\xi = 0,22$ ($12,6^\circ$); 2 – $\xi = 0,11$ ($6,3^\circ$); 3 – $\xi = 0,017$ ($0,95^\circ$). На рис. 3.2б аналогічна залежність наведена для випадку влітання електрона: 1 – $\xi = 0,06$ ($3,47^\circ$); 2 – $\xi = 0,04$ ($2,21^\circ$); 3 – $\xi = 0,017$ ($0,95^\circ$). На графіках вказана тільки одна гілка конусу, друга гілка є симетричною відносно напрямку руху електрона (нульовий кут на осі абсцис). З графіків, наведених на рис. 3.2, можна зробити наступні висновки: 1) кутова густина у максимумі розподілу при вильоті електрона більш ніж на порядок перевищує кутову гуστину при влітанні електрона, що зумовлено інтерференцією генерованого ПРВ при частковому відбиванні від другої поверхні тонкого шару речовини; 2) як при влітанні, так і при вильоті електрона зменшення кута ковзання супроводжується зменшенням кута розтвору конусу та зростанням кутової густини ПРВ; 3) при зростанні товщини мішені відбувається розмиття гострих максимумів (3) на рис. 3.2, що зумовлено зростанням внеску багатократного розсіювання електрона і

порушенням умов максимумів інтерференції ПРВ при його відбиванні від паралельних поверхонь зразку.

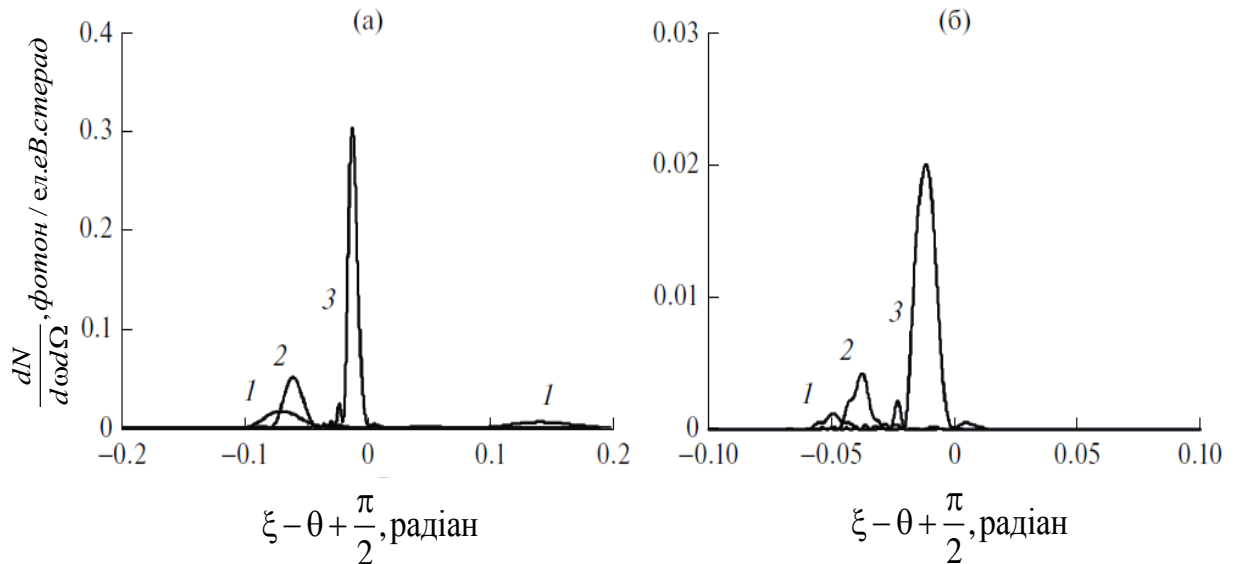


Рис. 3.2. Кутовий розподіл ПРВ як функція кутового розтвору конусу при вильоті (а) та влітанні (б) електрона у шар речовини (пояснення у тексті).

Отримані результати вказують на можливість трансформації конусу ПРВ при ковзаючому русі електронів пучка у тонкій мішені, причому такий спосіб трансформації є більш ефективним, а ніж трансформація при ковзаючому русі у напівнескінченній мішені [137,138]. Крім того, використання тонкої мішені принципово дозволяє використовувати трансформований (звужений) конус ПРВ як при влітанні у речовину, так і при вильоті (див. рис. 3.2а). Для цього достатньо використовувати тонкі мішені товщиною порядку 100 нм, нанесені на гладку підкладинку. У таких мішенях буде здійснюватися як звуження конусу ПРВ, так і його дифракція на атомних площинах. Очевидно, при наявності підкладинки експериментально може бути реалізованою реєстрація ПРВ тільки з боку вільної поверхні тонкого зразка, що відповідає дифракції конуса ПРВ при влітанні електронів (рис.3.2б).

Таким чином, теоретично встановлена можливість звуження конусу ПРВ та зростання кутової густини ПРВ при влітанні та вильоті електронного пучка у тонку мішень при зменшенні кута ковзання електронів пучка відносно поверхні мішені. Ефект може бути використаний для створення «самопідтримуючих» мішеней з активним формуванням конусів ПРВ.

3.2. Характеристики параметричного рентгенівського випромінення при розповсюдженні релятивістських електронів у порошках мікророзмірних частинок алмазу

При розгляді властивостей ПРВ раніше відзначалося (див. п. 1.3), що спектрально-кутовий розподіл такого випромінення визначається як параметрами пучка заряджених частинок та геометрією спостереження, так і характеристиками зразка, а саме, типом і параметрами кристалічної ґратки, її структурною досконалістю, а також розмірами і орієнтацією блоків когерентного розсіювання (БКР). У зв'язку з цим існує принципова можливість використання ПРВ для діагностики особливостей кристалічної структури твердих тіл, яка б доповнювала методи дифракції рентгенівських променів. Так, було показано, що спектрально-кутовий розподіл ПРВ чутливий до переважного упорядкування БКР (текстури) полікристалів Cu та зменшення БКР Ni від мікро- до нанорозмірів (300 нм) [143,144]. Однак, кількісні залежності параметрів ПРВ від розмірів БКР експериментально не досліджувалися. Тому у було виконано експериментальне дослідження спектрально-кутових характеристик ПРВ при розповсюдженні пучка електронів з енергією 7 Мев у порошкових зразках алмазу з різними розмірами мікрокристалів.

Для виконання експерименту було дещо модифіковано схему експериментального комплексу «Рентген 1» (рис. 2.1) відповідно до особливостей використаних зразків – порошоків алмазу. Зокрема, для збільшення кількості мікрокристалів порошкового зразку, в яких генерується

ПРВ, магнітооптична система була налаштована таким чином, щоб забезпечувався максимально можливий діаметр електронного пучка (до 10 мм), який пронизував порошковий зразок (рис. 3.3). Розбіжність пучка віртуальних фотонів за умов експерименту складала 8° , тоді як розбіжність електронного пучка була майже на порядок меншою. Як мішені використовувалися алмазні порошки з різним середнім діаметром зерен: а) $d = (0,3 \pm 0,1)$ мкм; б) $d = (6 \pm 1)$ мкм; в) $d = (42 \pm 7)$ мкм. Кожен з порошоків

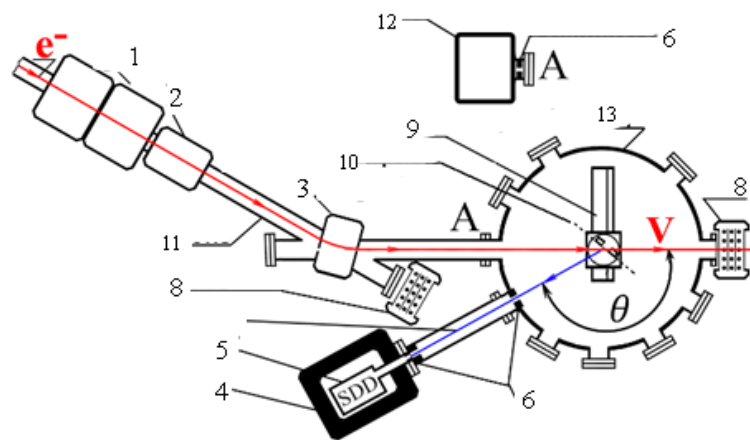


Рис. 3.3. Схема установки «Рентген 1», модифікованої для дослідження порошкових систем: 1 – квадрупольні лінзи; 2 – коректор; 3 – поворотний магніт; 4 – захист; 5 – детектор; 6 – коліматори; 8 – пропорційний лічильник; 9 – мішень; 10 – гоніометр; 11 – канал руху електронів; 12 – рентгенівська трубка; 13 – камера мішені.

був рівномірно розподілений на майларовій плівці розміром (10x24) мм та товщиною 40 мкм. Товщина шару порошку складала 200 мкм, порошки оброблялися ціанакриловим клеєм до утворення міцного шару. Для збільшення поверхні взаємодії кут між нормаллю до поверхні зразка та вектором швидкості електронів пучка складав 40° . Реєстрація ПРВ по

відношенню до напрямку електронного пучка здійснювалася під кутом $\theta = 151^\circ$. Як вже відзначалося, вибір зворотної геометрії реєстрації зумовлений тим, що при наближенні кута θ до 180° , по-перше, зменшується ширина піків ПРВ, по-друге, зростає інтенсивність піків ПРВ від кристалографічних площин з малими індексами Міллера, наприклад, (111) та (220), що суттєво покращує відношення сигнал/фон для таких максимумів [145]. Експериментальні параметри піків ПРВ, які відповідають дифракції віртуальних фотонів на площинах (111) и (220) алмазу, порівнювалися з дифрагованим рентгенівським випроміненням трубки (ДРВТ) від вказаних площин, отриманим з використанням рентгенівського випромінення трубки Oxford аrogee 5000 W. Напруга та сила струму складали 25 кеВ та 200 мА відповідно, геометрія рентгенівської дифракції зберігалася такою ж, як і у випадку ПРВ.

Типові спектри ПРВ, отримані при розповсюдженні електронного пучка з енергією 7 Мев у зразках алмазу з різним середнім розміром кристалітів, наведено на рис. 3.4 (верхній ряд). Там же представлені спектри ДРВТ на цих же зразках (рис. 3.4, нижній ряд). На суцільному фоні помітно виділяються піки ПРВ, утворені при дифракції віртуальних фотонів на кристалографічних площинах (111) та (220). Енергії таких піків – 3,116 кеВ та 5,089 кеВ, з точністю до 1% збігаються з теоретичним розрахунком у кінематичному наближенні для вказаної енергії електронів пучка та геометрії зйомки [146].

Як видно з рис. 3.4, відносна похибка визначення інтегральних інтенсивностей максимумів ПРВ від площин (111) та (220) не перевищує 5%. Тому можна прийняти, що відносна похибка визначення відношення таких інтегральних інтенсивностей $N(111)/N(220)$ складає 8 – 10%. Зауважимо, що спектри ПРВ містять характеристичні рентгенівські лінії атомів елементів, які входять до складу зразків як неконтрольовані домішки.

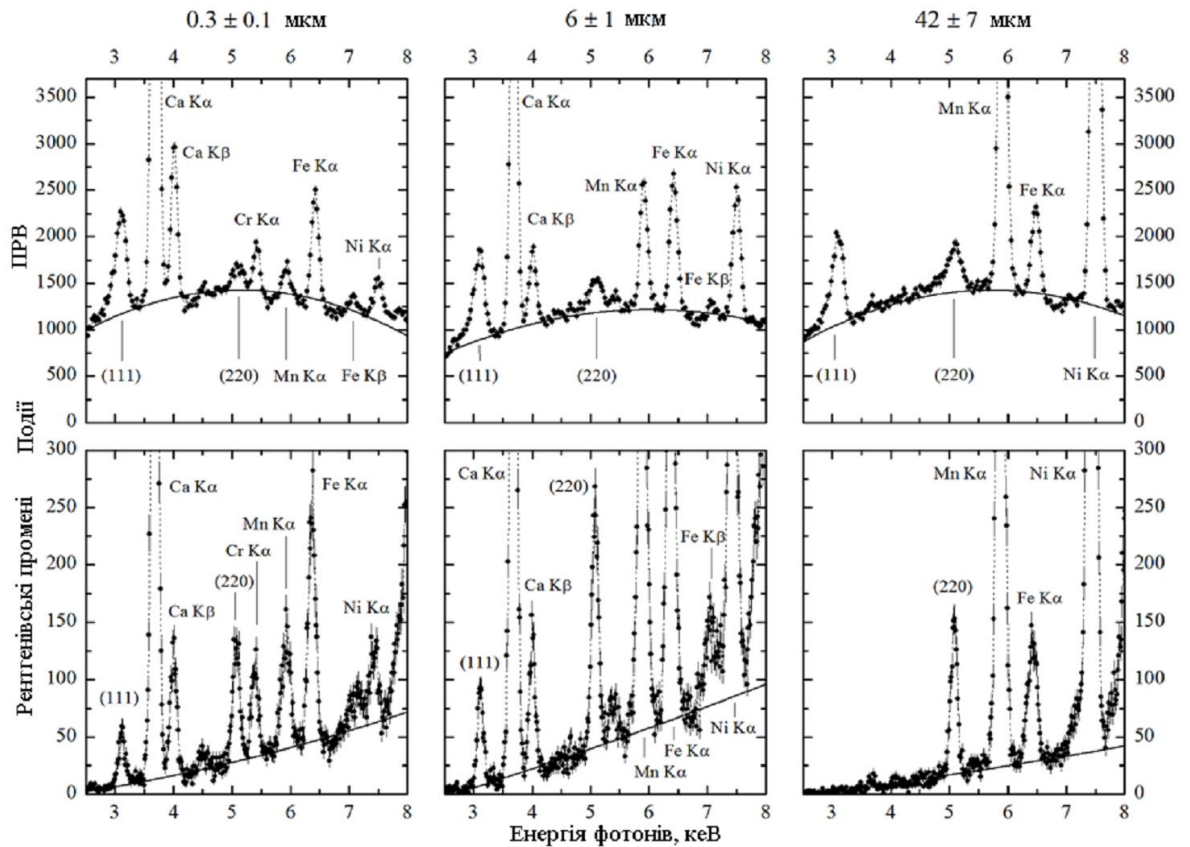


Рис. 3.4. Спектри ПРВ та рентгенівської дифракції на порошкових зразках алмазу з різними середніми розмірами мікрокристалів.

На рис. 3.5 представлено значення відношень інтегральних інтенсивностей максимумів ПРВ від площин (111) та (220) для зразків з різними розмірами зерен. Як видно, відношення інтенсивностей цих максимумів найбільше у випадку зразків з найменшими розмірами кристалітів $d = 0,3$ мкм. При зростанні розмірів кристалітів відношення $N(111)/N(220)$ спадає більш ніж у 2 рази. Відзначимо, що найбільша чутливість величини до розмірів БКР проявляється в області $d = 0,3 - 6,0$ мкм, а при подальшому зростанні розмірів ефект стає менш помітним. Для порівняння на цьому ж рисунку наведено залежність відносної інтенсивності $N(111)/N(220)$ максимумів ДРВТ. Як і очікувалося, таке відношення практично не виявляє залежності від розмірів БКР, що відповідає

як кінематичній, так і динамічній теорії рентгенівської дифракції. Таким чином, встановлено, що при проходженні пучка високоенергетичних електронів у полікристалах відношення інтенсивностей максимумів генерованого ПРВ дозволяє оцінювати середні розміри БКР. Важливість цього результату зумовлена тим, що генерація ПРВ відбувається практично в усьому об'ємі зразка, на відміну від ДРВТ, для якого товщина шару дифракції обмежується екстинкційною довжиною.

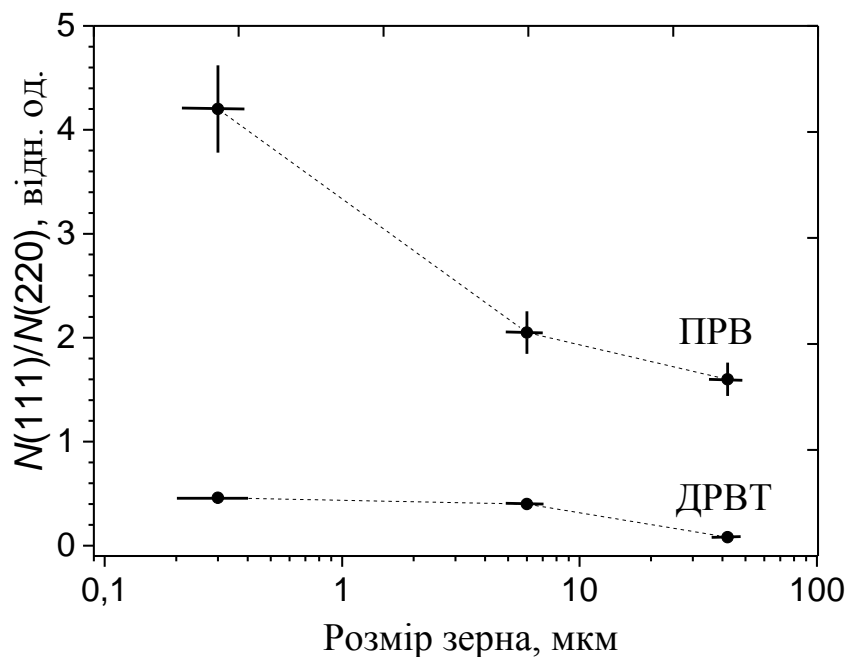


Рис. 3.5. Залежність відносної інтенсивності максимумів ПРВ та ДРВТ від розмірів зерен алмазу.

Аналіз генерованого ПРВ дозволяє оцінювати середні розміри БКР. Важливість цього результату зумовлена тим, що генерація ПРВ відбувається практично в усьому об'ємі зразка, на відміну від ДРВТ, для якого товщина шару дифракції обмежується екстинкційною довжиною.

Окрім відносної інтенсивності (111) та (220) максимумів ПРВ та ДРВТ було визначено їх ширину на половині максимального значення

інтенсивності (FWHM – full width at half maximum). Ці дані представлено у табл. 3.1. З таблиці випливає, що залежність параметру FWHM від розміру кристалітів не спостерігається, на відміну від ДРВТ, де у відповідності з рівнянням Шеррера зменшення діаметру зерна супроводжується зростанням величини FWHM. Відзначимо, що для зразків з діаметром зерен $d = 42$ мкм максимум ПРВ (111) не спостерігався, що може бути зумовлено особливістю фотопоглинання у таких зразках.

Таблиця 3.1

Параметр FWHM максимумів (111) та (220) ПРВ і ДРВТ для зразків алмазу з різним діаметром зерен

Розмір зерна, мкм	FWHM, eV			
	ПРВ (111)	ДРВТ (111)	ПРВ (220)	ДРВТ (220)
$0,3 \pm 0,1$	216 ± 12	127 ± 8	291 ± 93	146 ± 9
6 ± 1	211 ± 11	116 ± 4	252 ± 32	135 ± 4
42 ± 7	218 ± 16	–	281 ± 40	130 ± 4

Необхідно відзначити, що відомі у літературі вирази для спектрально-кутового розподілу інтенсивності ПРВ при розповсюдженні електронного пучка у полікристалічних середовищах у кінематичному наближенні не містять параметрів, які б визначали залежність такого розподілу від розмірів кристалітів. Наприклад, згідно з [83], для певного вектора оберненої ґратки $\vec{g}(h,k,l)$ ($\hbar = c = m_e = 1$):

$$\frac{d^2 N}{d\omega d\Omega} = A_g \Phi_g(\omega, \theta) \quad (3.11)$$

$$A_g = \frac{\pi q^6 n_e^2}{m^2 g^3} \left| S(\vec{g}) \right|^2 F^2(g) e^{-g^2 u^2 T} \quad (3.12)$$

$$\Phi_g(\omega, \theta) = \frac{g^2}{\omega^2} \sigma \left(\frac{gv}{1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta} - \omega \right) \times \left\{ 2 \frac{1 + 2\omega^2 \epsilon^{3/2} v \cos \theta / g^2}{\sqrt{1 - 2\omega^2 (1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta) / (g^2 v^2))^2 + 4\omega^2 (1 - \epsilon v^2) (1 - \omega^2 (1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta)^2 / (g^2 v^2)) / (g^2 v^2)}} - 1 - (1 + 2\omega^2 \sqrt{\epsilon} v \cos \theta (1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta) / (g^2 v^2)) \times \frac{(1 - 2\omega^2 \epsilon v^2 (1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta) / (g^2 v^2))^2 + 4\omega^4 \epsilon^2 (1 - \epsilon v^2) / g^4}{\left[(1 - 2\omega^2 (1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta)^2 / (g^2 v^2) + 4\omega^2 (1 - \epsilon v^2) (1 - \omega^2 (1 - \sqrt{\epsilon} v \cos \theta)^2 / (g^2 v^2)) / (g^2 v^2) \right]^{3/2}} \right\}.$$

У формулі (3.11) dN – кількість фотонів ПРВ з енергією ω у діапазоні енергій $d\omega$, які випромінюються за одиницю часу у тілесний кут $d\Omega$ одним електроном, що рухається зі швидкістю \vec{V} (в одиницях швидкості світла) через полікристалічну середу з діелектричної проникністю ϵ та концентрацією електронів n_e ; u_T — амплітуда теплових коливань атомів, $S(\vec{g})$ — структурний фактор кристалу, нормований на кількість атомів в елементарній комірці; $F(\vec{g})$ — атомний фактор, нормований на кількість електронів в атомі; $\sigma(x)$ — функція Хевісайда, θ — кут між напрямком швидкості електрона і напрямком поширення квантів ПРВ.

Отже, у кінематичному наближенні інтенсивність ПРВ згідно (3.11) та (3.12) визначається тільки геометрією експерименту та структурними характеристиками речовини, зокрема, структурним та атомним факторами $S(\vec{g})$, $F(\vec{g})$. У той же час, кристаліти різних розмірів відрізняються різною кількістю атомних площин, на яких відбувається Бреггівська дифракція віртуальних фотонів ПРВ. У рентгеноструктурному аналізі добре відома корекція відбивальної здатності монокристалу за рахунок явища первинної екстинції. А саме, коефіцієнт відбивання для певного сімейства площин (hkl) залежить від кількості площин (m) та їх розсіюючої здатності у Бреггівському напрямку $(q_{(hkl)})$ як $\rho(hkl) = th(mq_{(hkl)}) / mq_{(hkl)}$ [147]. Якщо

припустити, що ефект, подібний до первинної екстинції характеристичних рентгенівських променів у монокристалах, спостерігається і при дифракції ПРВ у полікристалічних системах, то залежність відношення інтенсивностей максимумів ПРВ (111) та (220) можна представити як

$$\frac{N(111)}{N(220)} = K \frac{\text{th}(mq_{(111)})}{\text{th}(mq_{(220)})}, \quad (3.13)$$

де $\text{th}(mq) = \frac{\text{sh}(mq)}{\text{ch}(mq)} = \frac{e^{mq} - e^{-mq}}{e^{mq} + e^{-mq}}$, $q_{(111)}$, $q_{(220)}$ – розсіюючі здатності ПРВ для площин (111) та (220). Як видно з (3.13), при зміні кількості площин m має змінюватися відношення у правій частині виразу (3.13), що і відповідає ефекту, який спостерігається. У той же час, необхідно підкреслити, що наведе пояснення є лише якісним і тому потребує послідовного застосування методів динамічної теорії дифракції ПРВ для з'ясування природи вказаного ефекту.

Таким чином, розроблено та відпрацьовано методику експериментального дослідження характеристик ПРВ у зворотній геометрії реєстрації ($\theta = 151^\circ$) при розповсюдженні пучка високоенергетичних електронів у порошкових зразках алмазу. Встановлено, що відношення інтенсивностей максимумів ПРВ $N(111)/N(220)$ зменшується при зростанні діаметру кристалітів алмазу. Залежність відношення інтенсивностей максимумів ПРВ від площин (111) та (220) може бути зумовлена екстинційними ефектами при дифракції ПРВ у БКР кінцевих розмірів. Чутливість відношення інтенсивностей ліній ПРВ до розмірів кристалітів може бути покладена в основу нового методу оцінки розмірів мікро- та наночастинок.

кристал, у якому кут мозаїчності $\sigma \ll 2\gamma_{eff}^{-1}$. Тоді, за умов нашого експерименту ($2\gamma_{eff}^{-1} \approx 7,8^\circ$) у кремнії можна очікувати, що на кутовій відстані $\approx 4^\circ$ симетрично від центрального провалу інтенсивності повинні спостерігатися два максимуми ПРВ. У випадку ВОПГ кут мозаїчності складає $\sigma \approx 0,4^\circ$, тобто і в цьому випадку можна сподіватися на спостереження чіткого розподілу інтенсивності у двох симетричних максимумах ПРВ. Таким чином, обрані зразки повинні забезпечити найбільш ефективне спостереження максимумів ПРВ при куті спостереження $\theta = 180^\circ$.

При виконанні вимірювань використовувався монокристал кремнію товщиною 300 мкм, у якого на фізичну поверхню було виведено площини (110), та ВОПГ товщиною 3 мм, у якого фізична поверхня формується площинами (001). Кристали розташовувалися у камері так, що напрямок розповсюдження електронів пучка збігався з нормаллю до фізичної поверхні зразків. За формулою Бреггів виконувався розрахунок енергій фотонів ПРВ, яким відповідають максимуми у спектрі дифрагованих променів:

$$E_{(hkl)} = \frac{nhc}{2d_{(hkl)} \sin(180^\circ / 2)}, \quad (3.14)$$

де n – порядок відбивання, h – стала Планка, c – швидкість світла у вакуумі.

Для використаних зразків кремнію дифракція ПРВ відбувалася на кристалографічних площинах (220), (440) та (660) (параметр елементарної комірки Si $a = 5,4307 \text{ \AA}$ [148], відповідно $d_{(220)} = 1,920 \text{ \AA}$, $d_{(440)} = 0,960 \text{ \AA}$, $d_{(660)} = 0,640 \text{ \AA}$). За формулою (3.14) повинні були спостерігатися максимуми ПРВ з енергією фотонів $E_{(220)} = 3,229 \text{ кеВ}$, $E_{(440)} = 6,457 \text{ кеВ}$ та $E_{(660)} = 9,687 \text{ кеВ}$. Для ВОПГ дифракція ПРВ відбувалася на кристалографічних площинах (002), (004), (006) та (008) (параметр

елементарної комірки $c = 6,708 \text{ \AA}$ [149], відповідно $d_{(002)} = 3,354 \text{ \AA}$, $d_{(004)} = 1,677 \text{ \AA}$, $d_{(006)} = 1,118 \text{ \AA}$, $d_{(008)} = 0,839 \text{ \AA}$). За формулою (3.14) повинні спостерігатися максимуми ПРВ з енергією фотонів $E_{(002)} = 1,848 \text{ кеВ}$, $E_{(004)} = 3,697 \text{ кеВ}$, $E_{(006)} = 5,545 \text{ кеВ}$ та $E_{(008)} = 7,392 \text{ кеВ}$.

Типовий спектр ПРВ кремнію при зворотній реєстрації ($\theta = 180^\circ$) наведено на рис. 3.6.

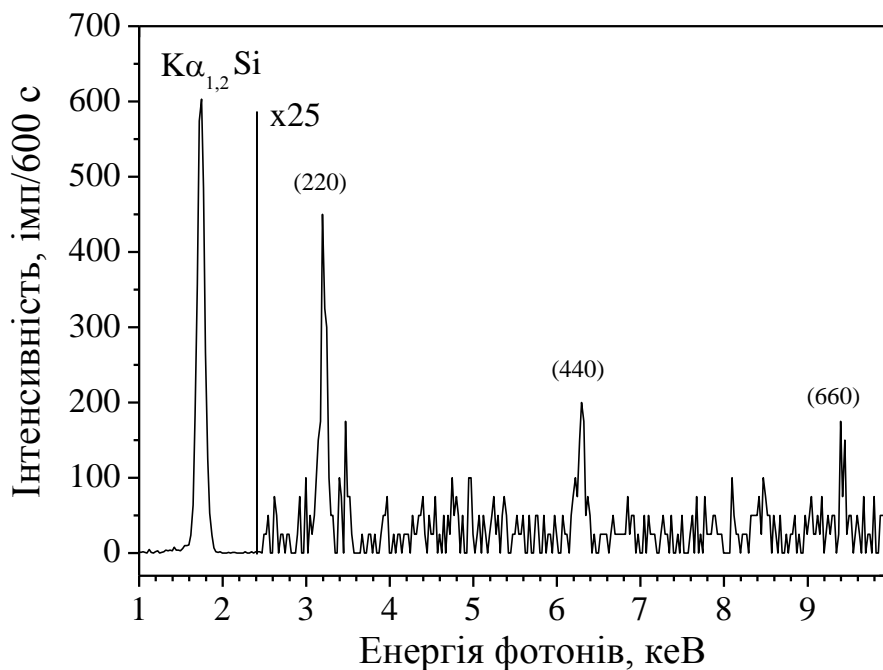


Рис. 3.6. Спектр ПРВ кремнію при зворотній реєстрації ($\theta = 180^\circ$)

У спектрі спостерігаються три помітних максимуми, яким відповідає дифракція від площин (220), (440) та (660). Крім того, для калібрування інтенсивності ПРВ одночасно реєструвалося характеристичне $K\alpha$ випромінювання Si з енергією фотонів 1,739 кеВ. Виявлено, що енергія максимумів ПРВ з точністю до 0,5% збігається з даними наведених вище розрахунків. У подальшому досліджувалися орієнтаційні залежності інтенсивності максимуму (220), тобто залежності інтенсивності ПРВ від кута

відхилення площини зразка від нульового положення (положення, при якому реєструється повний спектр – рис. 3.6). Використовувалися два типи кутових відхилень. Перший тип – обертання зразка на кут φ навколо вертикальної вісі гоніометру, яке забезпечує поворот площини зразка у горизонтальній площині гоніометру. Кут φ змінюється від нуля до $\varphi = \pm 10^\circ$. Другий тип – обертання зразка на кут χ навколо вісі, що лежить у горизонтальній площині гоніометру та перпендикулярна до напрямку електронного пучка. Таке обертання забезпечує поворот площини зразка у вертикальній площині гоніометру. Кут χ також змінюється від нуля до $\chi = \pm 10^\circ$. Типові орієнтаційні залежності наведено на рис. 3.7 та рис. 3.8

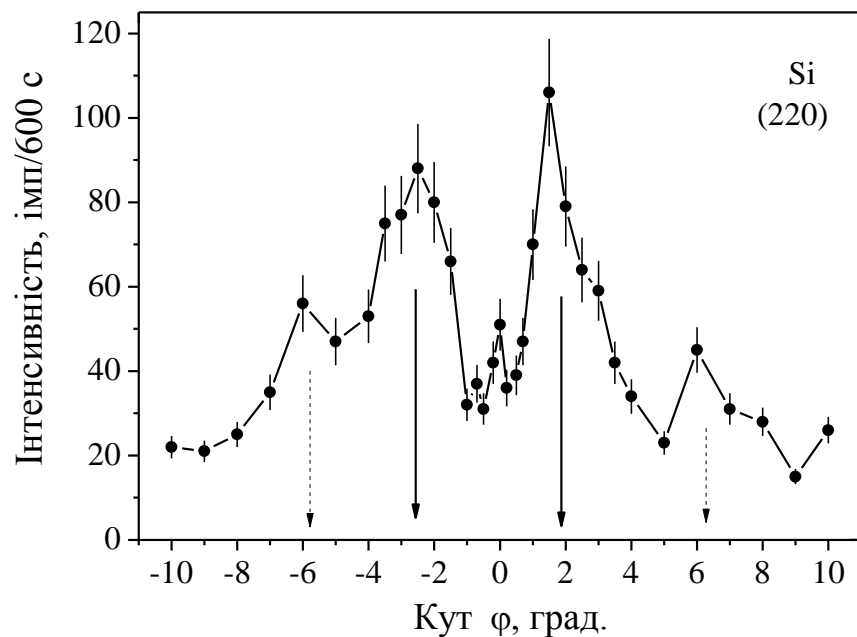


Рис. 3.7. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (220) Si при обертанні на кут φ .

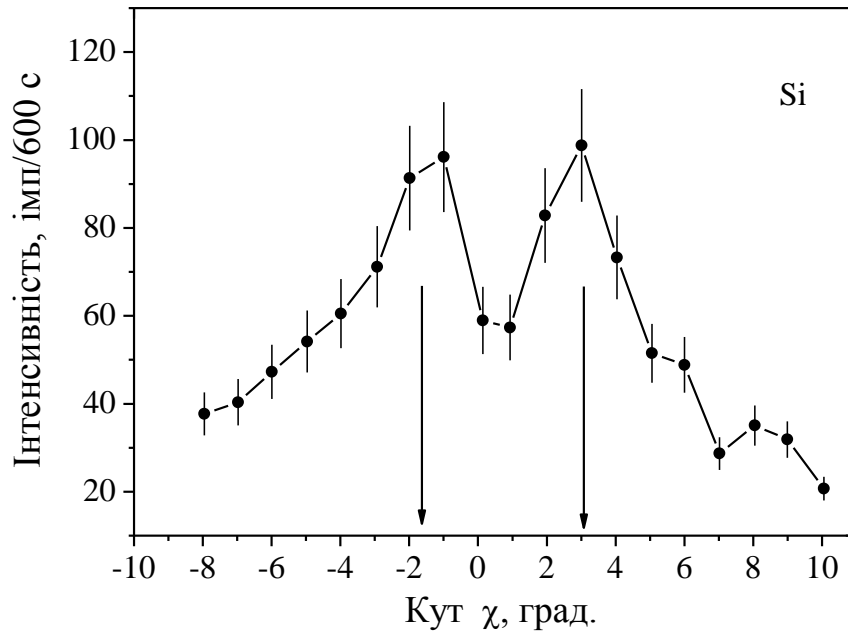


Рис. 3.8. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (220) Si при обертанні на кут χ .

Як видно з наведених рисунків, спостерігаються два симетричні максимуми, які відображують переріз конуса ПРВ. При наближенні до центру розподілу ($\varphi, \chi \rightarrow 0$) інтенсивність не спадає до нуля, як це передбачається у кінематичному наближенні (див. п.1.2), що зумовлено як багатократним розсіюванням ПРВ, так і можливими малими похибками у виставленні орієнтації мішені та обмеженістю кутового розділення гоніометру. Відзначимо, що відстань між максимумами складає приблизно 5° , що менше за очікувану ширину конусу ($2\gamma_{eff}^{-1} \approx 7,8^\circ$). При цьому на залежності інтенсивності від кута φ спостерігаються додаткові максимуми в області кутів $\varphi = \pm 6^\circ$, а максимуми на залежності інтенсивності від кута χ помітно уширені. На нашу думку, такі особливості орієнтаційних залежностей можуть бути зумовлені певною структурною недосконалістю монокристалів кремнію, які використовувалися як зразки. Зокрема, неточність виведення кристалографічних площин (hkl) на фізичну поверхню у $(1-2)^\circ$ може спричиняти подібну деформацію конусу ПРВ. На користь

такого припущення свідчить той факт, що у подальшому для зразків ВОПГ відмінність прогнозованого значення ширини конусу від експериментально визначеного є вже дещо меншою. (див далі) .

Відзначимо ще один тип орієнтаційних залежностей, а саме, залежності енергії фотонів ПРВ у максимумі від кутів φ, χ (рис. 3.9, рис.3.10). Як видно з цих рисунків, при зміні кутів $\varphi = \pm 10^\circ$, $\chi = \pm 10^\circ$ енергія фотонів ПРВ у межах роздільної здатності детекторів (0,1 – 0,2 кеВ) практично не змінюється У той же час, у кінематичному наближенні можна було очікувати деякого зменшення енергіях при зростанні кутів разорієнтації [47,48]. Однак, при вказаній роздільній здатності детекторів такий ефект у даній роботі не спостерігався.

На рис. 3.11 представлено типовий спектр ПРВ ВОПГ при при зворотній реєстрації ($\theta = 180^\circ$). У спектрі спостерігаються передбачувані максимуми ПРВ від площин (002), (004) та (006), причому розбіжність значень розрахованих та експериментально визначених енергій піків також не перевищує 0,5%. Як і для кремнію, було виконано дослідження

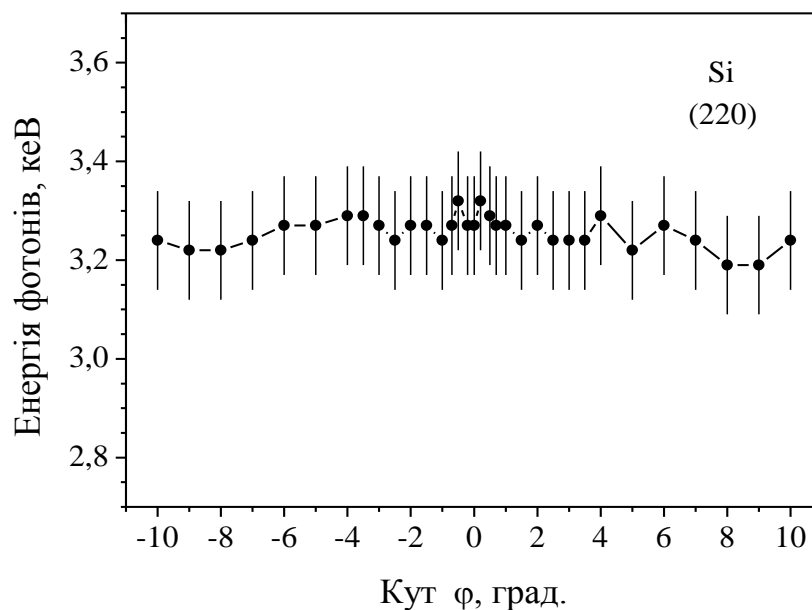


Рис. 3.9. Кутова орієнтаційна залежність енергії максимуму (220) Si при обертанні на кут φ .

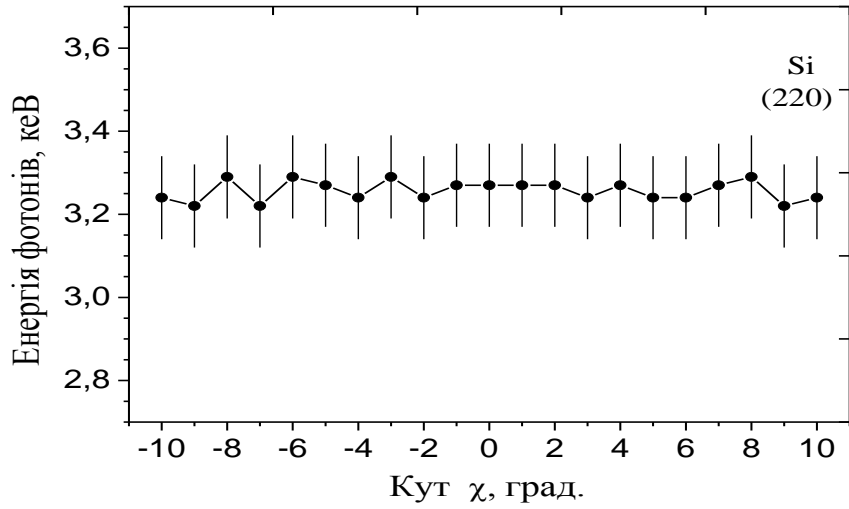


Рис. 3.10. Кутова орієнтаційна залежність енергії максимуму (220) Si при обертанні на кут χ .

орієнтаційних залежностей інтенсивності та енергії максимуму (002) від кутів разорієнтації. Отримані залежності для інтенсивності наведено на на рис. 3.12 та рис. 3.13. Зокрема, на залежності інтенсивності від кута φ для зразків ВОПГ максимуми є більш симетричними і відстань між ними складає

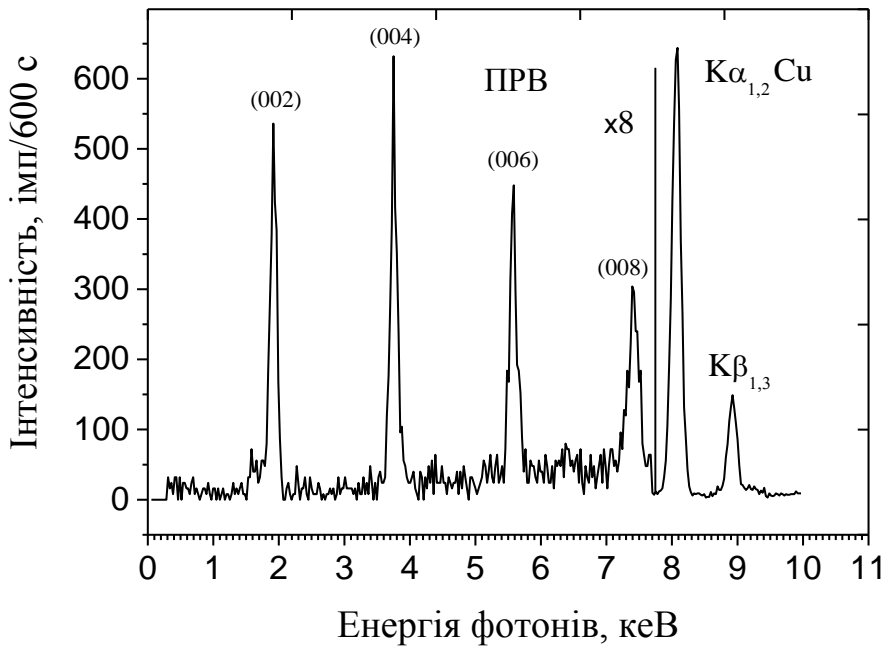


Рис. 3.11. Спектр ПРВ ВОПГ при зворотній реєстрації ($\theta = 180^\circ$).

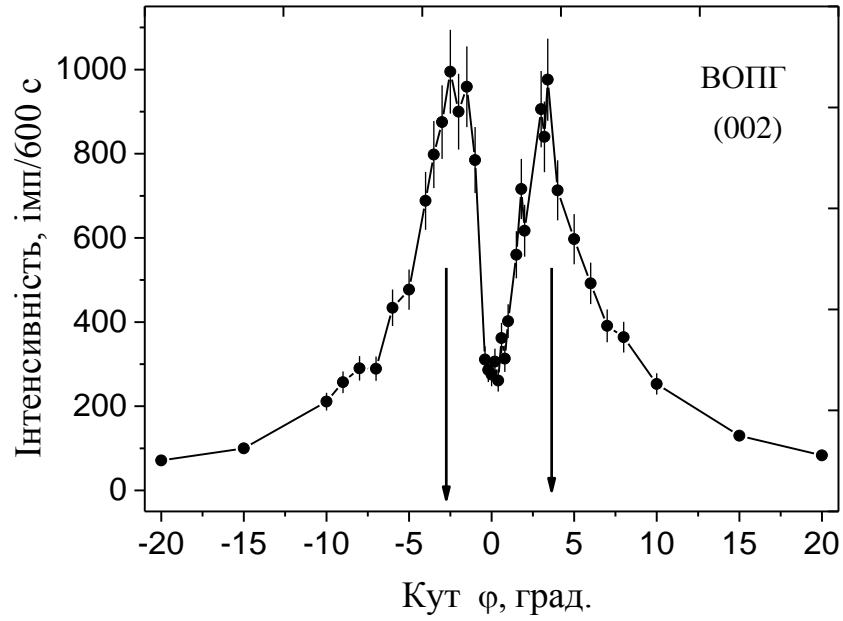


Рис. 3.12. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (002) ВОПГ при обертанні на кут ϕ .

$6,3^\circ$, що ближче до очікуваного значення $7,8^\circ$. Аналогічний результат отримано і для орієнтаційної залежності інтенсивності від кута χ (рис. 3.13).

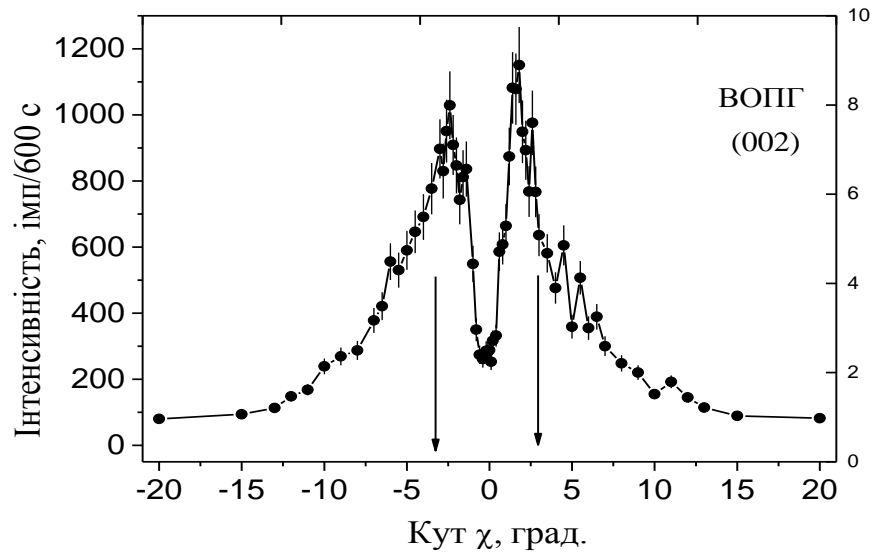


Рис. 3.13. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (002) ВОПГ при обертанні на кут χ .

У цьому випадку відстань між максимумами складає $6,2^\circ$. Отже, частина розбіжності у кутовому розторі конусу ПРВ може бути зумовлена особливостями структури зразків, зокрема, можливою разорієнтацією фізичної поверхні відносно виведених у відбиваюче положення кристалографічних площин, а також неточностями юстування зразків у гоніометрі. Інша частина розбіжності, на нашу думку, зумовлена ефектами динамічної дифракції, які проявляються при зростанні структурної досконалості кристалів. А саме, такі ефекти максимальні у більш структурно досконалому кремнії у порівнянні з ВОПГ, що і відображується зменшенням розбіжності у кутовій ширині конусу ПРВ між експериментом і кінематичною моделлю саме для зразків ВОПГ.

Нарешті, на рис. 14 та рис. 15 для ВОПГ наведено залежності енергії фотонів ПРВ у максимумі від кутів φ, χ . Як видно, у межах роздільної здатності детекторів, як і у випадку Si, енергія практично не змінюється.

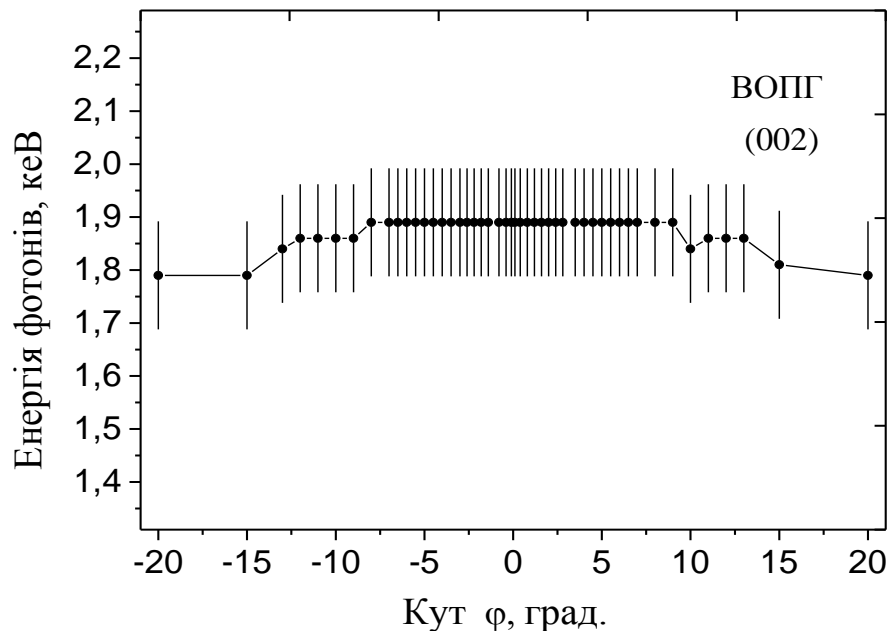


Рис. 3.14. Кутова орієнтаційна залежність енергії максимуму (002) ВОПГ і при обертанні на кут φ .

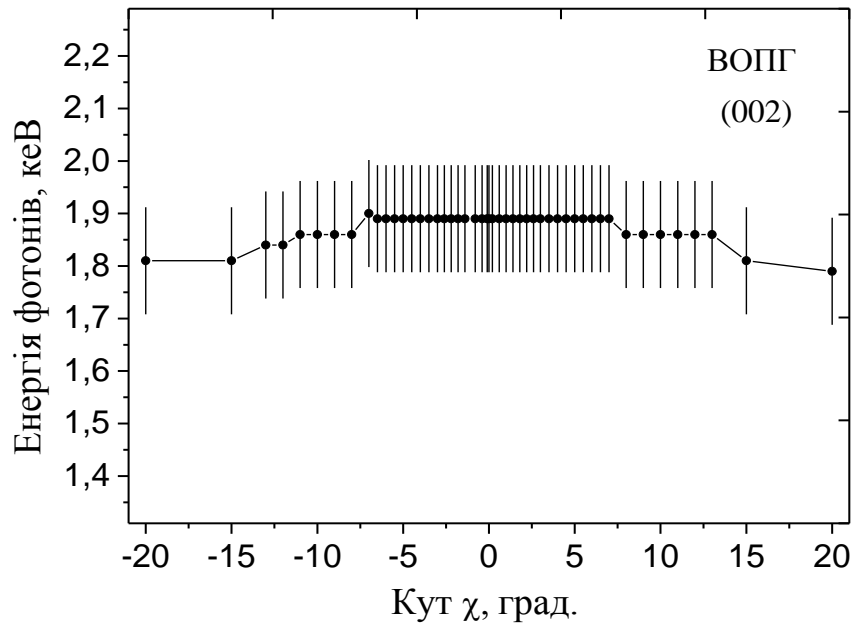


Рис. 3.15. Кутова орієнтаційна залежність енергії максимуму (002) ВОПГі при обертанні на кут χ .

Таким чином, виконано дослідження спектрально-кутових розподілів інтенсивності ПРВ при розповсюдженні пучка електронів (7 Мев) у монокристалічному кремнії та ВОПГ у геометрії зворотної реєстрації ($\theta = 180^\circ$). Встановлено, що спектри ПРВ при нормальному падінні пучка електронів на фізичну поверхню (110) кристалів Si містять три максимуми (220), (440) та (660), а при падінні на фізичну площину (001) кристалів ВОПГ містять чотири максимуми (002), (004), (006) та (008), енергії яких з точністю до 0,5% збігаються зі значеннями, визначеними у Бреггівському наближенні. Виявлено, що кутові орієнтаційні залежності інтенсивності максимумів (220) Si та (002) ВОПГ мають два максимуми, симетрично розташованих відносно нульового кута, які відображують переріз конусу ПРВ площиною детектора. Показано, що відстань між максимумами на $2,8^\circ$ та $1,5^\circ$ відповідно у Si та ВОПГ менша за передбачуваний повний кутовий розтвір конусу $2\gamma_{eff}^{-1} \approx 7,8^\circ$. Вказана розбіжність може бути зумовлена як суто експериментальними

факторами (разорієнтація фізичної поверхні кристалу відносно виведеної на неї кристалографічної площини, неточністю юстування зразка у гоніометрі), так і ефектами динамічної дифракції, які проявляються при зростанні структурної досконалості кристалів. Кутові орієнтаційні залежності енергії фотонів ПРВ у максимумах (220) Si та (002) ВОПГ виявили, що у межах роздільної здатності детекторів в усьому діапазоні зміни кутів φ, χ енергія фотонів ПРВ залишається сталою.

Висновки розділу 3

1. Теоретично передбачено можливість звуження конусу ПРВ та зростання кутової густини ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів у тонких кристалах в області малих кутів ковзання електронного пучка відносно поверхні мішені. Ефект може бути використаний при створенні мішеней для контрольованого формування конусів ПРВ.

2. Виконано експериментальне дослідження спектрів ПРВ при розповсюдженні пучка високоенергетичних електронів у порошкових зразках алмазу з розмірами кристалітів $d = 0,3$ мкм, $d = 6$ мкм та $d = 42$ мкм при зворотній реєстрації ($\theta = 150^\circ$). Виявлено, що відношення інтенсивностей максимумів ПРВ (111) та (220) зменшується при зростанні діаметру кристалітів алмазу. Зокрема, при переході від частинок діаметром $d = 0,3$ мкм до частинок $d = 6$ мкм таке зменшення складає майже 2 рази.

3. Залежність відношення інтенсивностей максимумів ПРВ від розмірів кристалітів визначається екстинційними ефектами при дифракції ПРВ у блоках когерентного розсіювання кінцевих розмірів. Чутливість відношення інтенсивностей ліній ПРВ до розмірів кристалітів може бути покладена в основу нового методу оцінки розмірів мікро- та наночастинок.

4. Виконано експериментальне дослідження спектрально-кутових розподілів інтенсивності ПРВ при розповсюдженні пучка високоенергетичних електронів у монокристалічному кремнії та ВОПГ у

геометрії зворотної реєстрації ($\theta = 180^\circ$). Встановлено, що при нормальному падінні пучка електронів на фізичну поверхню (110) Si спектри ПРВ містять максимуми (220), (440) та (660), а при нормальному падінні на фізичну поверхню (001) ВОПГ – максимуми (002), (004), (006) та (008), енергії яких з точністю до 0,5% збігаються зі значеннями, визначеними у Бреггівському наближенні.

5. Показано, що кутові орієнтаційні залежності інтенсивності максимумів (220) Si та (002) ВОПГ містять два симетричних максимуми, які відображують переріз конусу ПРВ перпендикулярною до осі конусу площиною. Виявлена розбіжність між експериментально визначеним кутовим розтвором конусу ПРВ та передбачуваним у кінематичному наближенні, яка складає $2,8^\circ$ та $1,5^\circ$ відповідно для Si та ВОПГ. Причина такої розбіжності може бути зумовлена сукупною дією як суто експериментальних факторів (разорієнтація фізичної поверхні кристалу відносно виведеної на неї кристалографічної площини, неточністю юстування зразка), так і ефектами динамічної дифракції, які проявляються при зростанні структурної досконалості кристалів.

РОЗДІЛ 4. ОСОБЛИВОСТІ КРАТНОЇ ІОНІЗАЦІЇ АТОМІВ $3p$ ТА $3d$ МЕТАЛІВ ПРИ РОЗПОВСЮДЖЕННІ НЕРЕЛЯТИВІСТСЬКИХ ЕЛЕКТРОНІВ У КРИСТАЛАХ

У попередньому розділі було розглянуто результати теоретичного та експериментального дослідження параметрів ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів (7 MeV) у тонкому шарі речовини, а також у полі- та монокристалах алмазу, кремнію і високоорієнтованого піролітичного графіту. Основна увага приділялася визначенню параметрів, що характеризують саме процеси генерації та дифракції ПРВ (форма конусу та спектрально-кутовий розподіл ПРВ) в обмежених середовищах з просторовою періодичністю зміни діелектричної сприйнятливості. Однак окрім генерації неперервного рентгенівського випромінювання (гальмівного та ПРВ) розповсюдження електронного пучка у кристалах супроводжується збудженням та іонізацією атомів за рахунок кулонівської взаємодії бомбардуючого електрона з електронною підсистемою атому. У п. 1.2 відзначалося, що за умов електронного бомбардування такі процеси мають достатньо високий вихід, який дозволяє за характеристичними рентгенівськими спектрами іонізованих атомів визначати основні характеристики електронної структури твердих тіл, що опромінюються електронами. У даному розділі наведено результати експериментального дослідження рентгенівських емісійних $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V, Cr як у чистих металах, так і їх оксидах, та проаналізовано механізми впливу найближчого оточення атому, що випромінює, на параметри таких спектрів. Крім того, визначено характеристики процесів $1s^{-1}2p^{-1}$, $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації металу Al при бомбардуванні електронами з енергією 5 – 100 keV.

4.1. Характеристики рентгенівських емісійних $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V, Cr у металах та оксидах при електронному бомбардуванні

Засвідчуючи значні успіхи зондових методів (сканувальна тунельна, магніто- та електросилова мікроскопія та спектроскопія), а також фотоелектронної спектроскопії при дослідженні електронної структури твердих тіл, необхідно відзначити, що одним з ефективних та надійних експериментальних методів визначення будови енергетичних зон електронів у твердому тілі на сьогодні все ж залишається рентгенівська емісійна спектроскопія. Такі дослідження базуються, головним чином, на визначенні зсувів енергій діаграмних ліній K -серії та експериментальних розподілів інтенсивності емісійних $K_{\beta 2,5}$ -, L - та M -смуг [150-152]. Відповідна рентгенівська емісія є результатом одноелектронних переходів між однаковансійними станами. У той же час, важливу роль при іонізації атомів відіграють процеси «струшування» електронів (*shake-off*, SO) при однократній прямій іонізації атому електроном, що налітає, які призводять до появи додаткових вакансій в атомах і виникненню кратноіонізованих станів (див. п.п. 1.2.3). Зокрема, іонізація K -оболонки електронами може супроводжуватися викидом $2p$ електрона з утворенням двовакансійних 1P , 3P -станів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації. Одноелектронний радіаційний розпад цих станів і породжує $K\alpha L^1$ -сателіти, до яких належать $K\alpha_3$ лінії – розпад 3P станів через переходи $^3P_{0,1,2}(1s^{-1}2p^{-1}) - ^3P_{0,1,2}(2p^{-2})$, та $K\alpha_4$ -, $K\alpha'$ -лінії – розпад 1P -станів через переходи $^1P_1(1s^{-1}2p^{-1}) - ^1D_2(2p^{-2})$ та $^1P_1(1s^{-1}2p^{-1}) - ^1S_0(2p^{-2})$ [87,88]. Як відзначалося у п.п. 1.2.3, важливою особливістю вказаних сателітів є значна чутливість відносної інтенсивності $\chi = I(^3P) / I(^1P) = I(K\alpha_3) / [I(K\alpha_4) + I(K\alpha')]$ до параметрів хімічного зв'язку атома, що випромінює. Зокрема, ще у ранніх роботах [88,92] було

виявлено зменшення величини χ у середньому від 1,2 до 0,6 при переході від чистих елементів Mg, Al, Si до відповідних оксидів. Для атомів сірки величина відносної інтенсивності χ зменшувалася у сполуках вже як з позитивним, так і негативним зарядом атомів S [153]. Стосовно $3d$ -елементів, то у літературі такі дані обмежуються тільки роботою [154], в якій повідомляється про результати дослідження фотометодом $K\alpha L^1$ спектрів Ti та Cr при фотонному збудженні. Враховуючи певні обмеження фотометоду та низьку загальну інтенсивність зареєстрованих $K\alpha L^1$ сателітів [154], ці результати потребують перевірки за умови отримання більш інтенсивних $K\alpha L^1$ спектрів при електронному збудженні та іонізаційній реєстрації. Тому у представленій частині дисертаційної роботи виконано експериментальне дослідження структури та відносної інтенсивності $K\alpha L^1$ сателітів Ti, V та Cr в металах та оксидах TiO_2 (рутил), Cr_2O_3 , V_2O_3 , VO_2 , V_2O_5 , а також розглянуто механізм впливу хімічного зв'язку на величину відносної інтенсивності γ сателітів групи $K\alpha L^1$ цих елементів.

Методика отримання $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr при електронному бомбардуванні наведена у п. 2.4. Як приклад, для вказаної групи елементів на рис. 4.1 представлено типовий $K\alpha$ спектр V, який містить діаграмні $K\alpha_{1,2}$ лінії та $K\alpha L^1$ сателіти. Структура $K\alpha$ спектрів Ti та Cr подібна до наведених на рис. 4.1. При виділенні $K\alpha L^1$ сателітів із загального $K\alpha$ контуру $K\alpha_{1,2}$ дублет апроксимувався чотирма амплітудними функціями Фойгта [155,156]:

$$V(E) = I_0 \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-t^2) dt}{\frac{w_L^2}{2w_G^2} + \left[\left(\frac{E - E_0}{\sqrt{2}w_G} \right) - t \right]^2}}{\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{I_0 \exp(-t^2) dt}{\frac{w_L^2}{2w_G^2} + t^2}}, \quad (4.1)$$

де w_G, w_L – гаусова та лоренцева напівширини; E_0 – положення максимуму функції $V(E)$; I_0 – пікова інтенсивність $V(E)$. При варіюванні параметрів

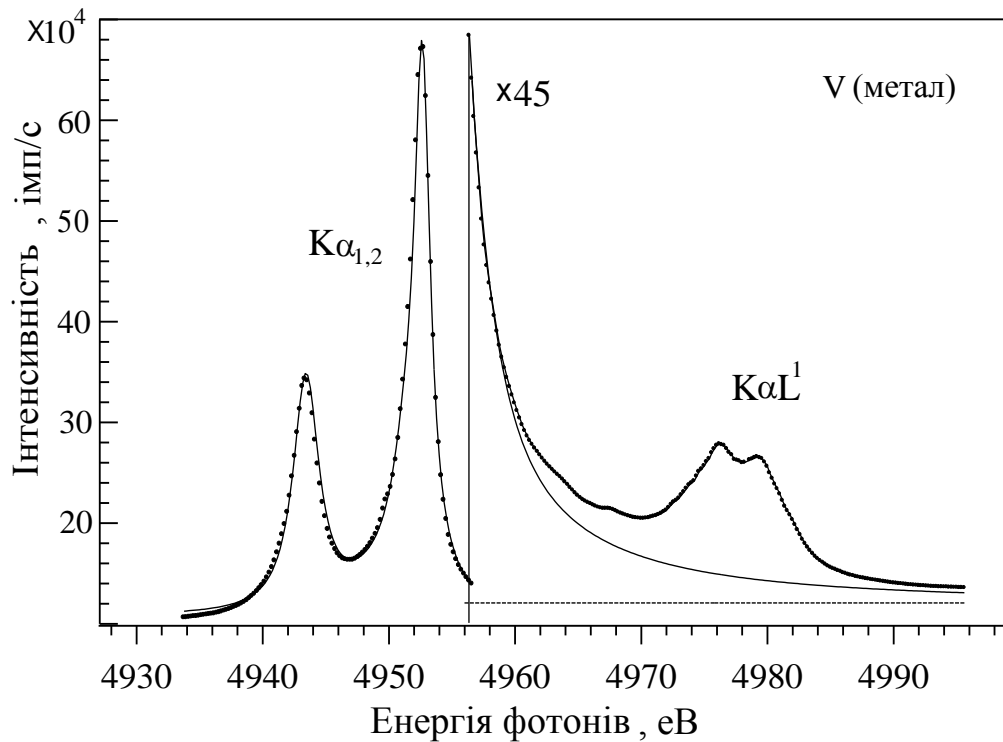


Рис. 4.1. $K\alpha$ спектр V при електронному бомбардуванні (енергія електронів 25 кеВ).

гауссова складова напівширини w_G , яка характеризує інструментальну функцію, підтримувалася сталою, інші параметри функцій Фойгта змінювалися. Підгонка параметрів апроксимуючих функцій здійснювалася за алгоритмом Левенберга-Марквардта [157,158]. Надалі здійснювався поділ $K\alpha L^1$ масивів на компоненти, які відповідають переходам між термами $^1P_1, ^3P_{0,1,2}$ початкової $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації та термами $^1S_0, ^3P_{0,1,2}, ^1D_1$ кінцевої $2p^{-2}$ конфігурації. У таблиці 1.1 наведено мультиплетну структуру $K\alpha L^1$ спектрів елементів $20 \leq Z \leq 29$, розраховану в роботі [100]. Зокрема, вказано вісім основних компонентів $a-h$ $K\alpha L^1$ спектру. Поділ $K\alpha L^1$ спектральних масивів здійснювався саме на ці 8 компонентів, кожен із яких,

у свою чергу, також апроксимувався амплітудною функцією Фойгта. При цьому варіювалися пікові інтенсивності компонентів та їх енергії, а гауссова та лоренцева напівширини підтримувалися сталими та однаковими для усіх компонентів. У табл. 4.1 наведено значення відносних інтенсивностей кожного з компонентів $a-h$ $K\alpha L^1$ спектру Ti, V та Cr в металах та оксидах TiO_2 (рутил), Cr_2O_3 , V_2O_3 , VO_2 , V_2O_5 . На рис. 4.2 наведено експериментальні

Таблиця 4.1

Відносні інтенсивності компонентів $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr у металах та оксидах при електронному бомбардуванні.

Інтенсивність компонента, $10^{-2}\%$	Ti	TiO_2	V	V_2O_3	VO_2	V_2O_5	Cr	Cr_2O_3
<i>a</i>	56	77	36	44	49	53	25	40
<i>b</i>	50	36	48	43	41	39	44	26
<i>c</i>	6	9	6	7	6	4	7	3
<i>d</i>	9	7	8	8	7	6	6	9
<i>e</i>	6	8	5	6	6	8	4	8
<i>f</i>	30	29	26	25	23	22	17	13
<i>g</i>	16	17	18	21	24	25	18	22
<i>h</i>	12	5	12	12	12	11	7	12
χ , відн. од.	1,98	1,21	2,88	2,32	2,05	1,75	3,41	1,78

$K\alpha L^1$ спектри ванадію у металі та оксидах V_2O_3 , VO_2 , V_2O_5 . Для подальшого аналізу визначалися відношення інтенсивності усіх компонентів, які відповідають радіаційним переходам із станів $^3P_{0,1,2}$ терму $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації, до інтенсивності усіх компонентів, які відповідають радіаційним переходам із станів 1P_1 терму $2p^{-2}$ конфігурації. Як видно з таблиці 4.1, таке відношення визначається наступними компонентами:

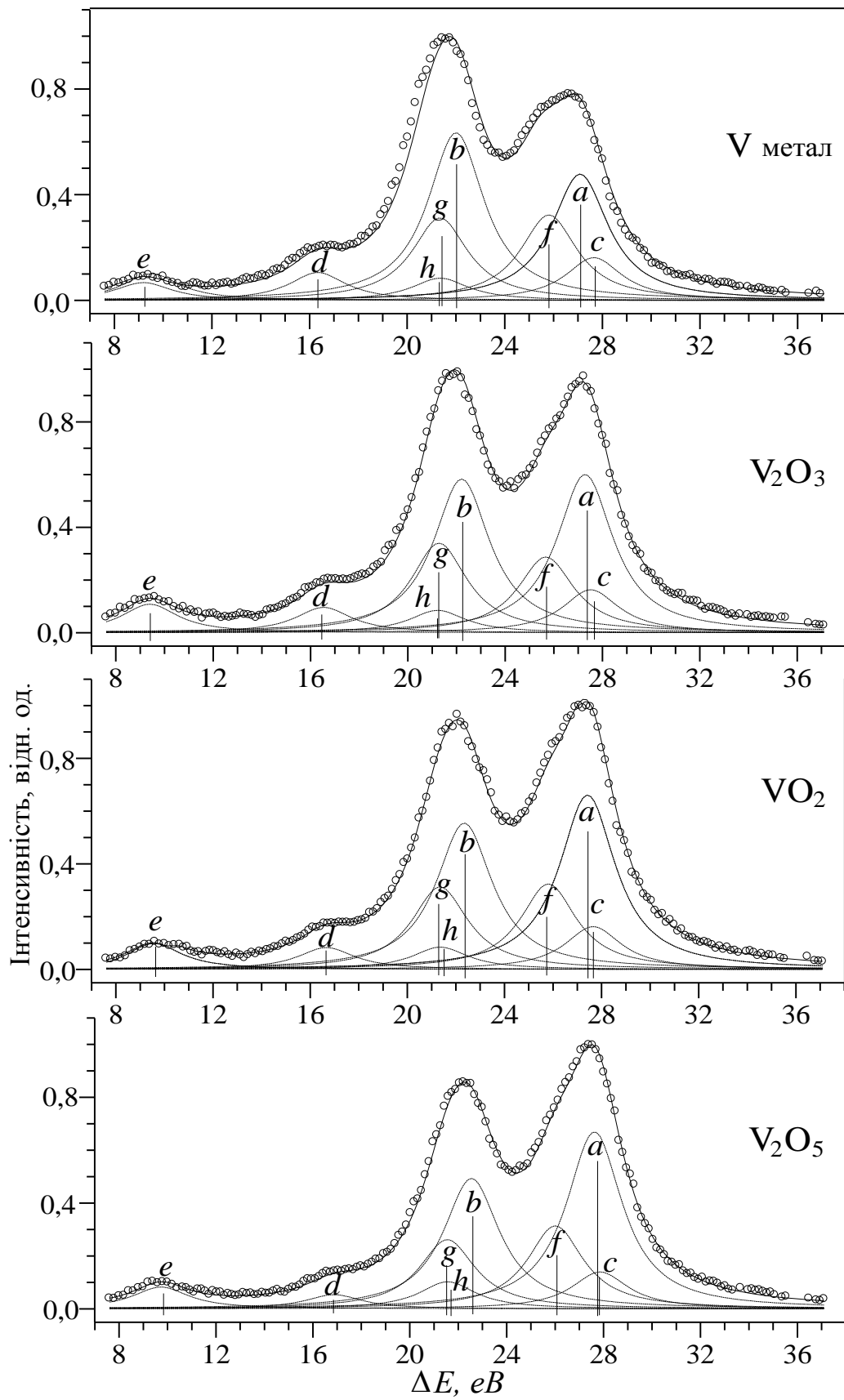


Рис. 4.2. $K\alpha L^1$ спектри ванадію у металі та оксидах V_2O_3 , VO_2 , V_2O_5 при електронному збудженні.

$$\chi = \frac{I(^3P)}{I(^1P)} = \frac{I(b) + I(f) + I(d) + I(c) + I(g) + I(h)}{I(a) + I(e)}. \quad (4.2)$$

У табл. 4.1 наведено визначені за формулою (4.2) значення відношення χ для усіх досліджених зразків (останній рядок). Відносна похибка визначення відносної інтенсивності кожного компонента складає 4 – 6%, похибка визначення відносної інтенсивності χ відповідно 10 – 12%. У табл. 4.2 вказано енергії зв'язку $2p_{3/2}$ електронів Ti, V, Cr (визначених за фотоелектронними спектрами) у металах та відповідних оксидах, зростання яких при переході від металів до оксидів характеризує позитивний ефективний заряд атомів Ti, V та Cr у цих сполуках.

Таблиця 4.2

Енергії зв'язку $2p_{3/2}$ електронів атомів Ti, V, Cr у металах та оксидах.

	Ti [159]	TiO ₂ [159]	Cr [160]	Cr ₂ O ₃ [160]	V [159]	V ₂ O ₃ [159]	VO ₂ [159]	V ₂ O ₅ [159]
Енергія $2p_{3/2}$, еВ	453,7	458,5	574,2	575,7	512,4	515,4	516,3	517,3
Зсув енергії $2p_{3/2}$ в оксиді відносно металу, еВ	–	+5,2	–	+1,5	–	+3,0	+4,3	+5,3

Як видно з таблиці 4.1, для Ti та Cr відносна інтенсивність χ при переході від чистих металів до оксидів зменшується у 1,64 та 1,92 рази відповідно. Для оксидів ванадію зростання ефективного заряду V у ряду сполук V₂O₃ – VO₂ – V₂O₅, яке відображується збільшенням енергії зв'язку V $2p_{3/2}$, супроводжується зменшенням відношення χ від 2,32 (V₂O₃) до 1,75 (V₂O₅). Рис. 4.2 ілюструє залежність відносної інтенсивності χ від величини зсуву енергії $2p_{3/2}$ електронів в оксиді відносно металу.

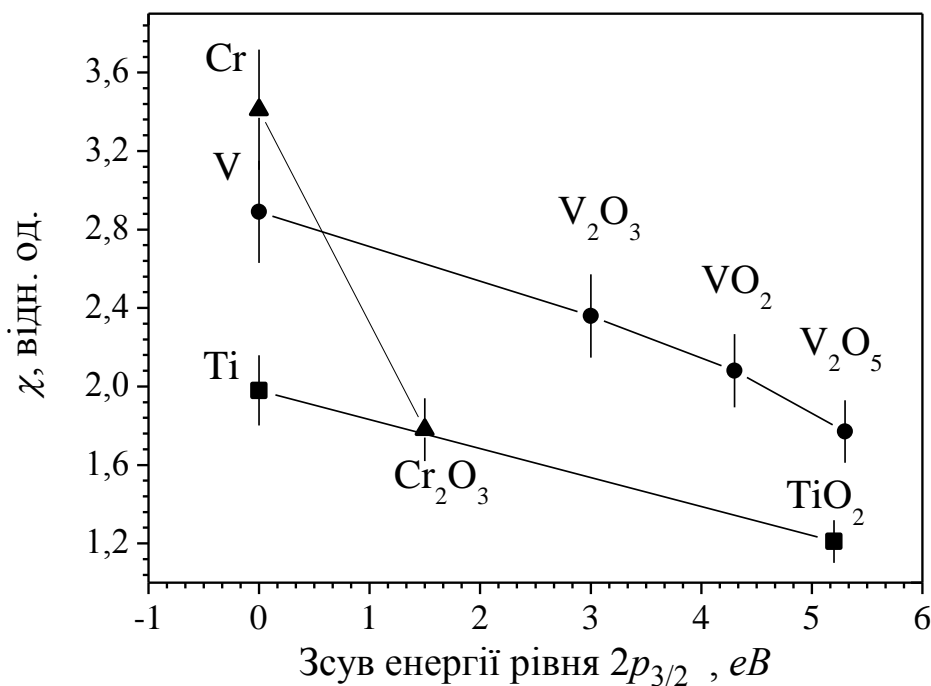


Рис. 4.3. Залежність відносної інтенсивності χ від величини зсуву енергії $2p_{3/2}$ електронів в оксиді відносно металу

Таким чином, експериментально підтверджено, що перехід від металів Ti та Cr до їх оксидів і при електронному бомбардуванні призводить до істотного зменшення відношення $\chi = I(^3P) / I(^1P)$. Вперше експериментально встановлено, що у ряду оксидів $\text{V}_2\text{O}_3 - \text{VO}_2 - \text{V}_2\text{O}_5$ зі зростаючим ефективним зарядом атомів V зменшення відношення χ є монотонним. Отже, загальні закономірності зміни відношення χ , встановлені раніше для сполук 3p-елементів [121,123,159-161], справедливі і для досліджених 3d-елементів.

Як відзначалося у п. 1.2.3, у літературі було запропоновано декілька моделей пояснення такого ефекту. На наш погляд, найбільш адекватно особливості процесу SO враховує модель взаємодії двох континуумів $1s^{-1}2p^{-1} (^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1} (^3P)\epsilon p$, яка була вперше запропонована у роботі [119] та залучалася для аналізу у роботі [154]. За цією моделлю побудова хвильових

функцій континуумів виконувалася через урахування їх конфігураційної взаємодії:

$$\psi_{3P}(E) = \int d\varepsilon [C_{11}U_{\varepsilon}(^3P) + C_{12}U_{\varepsilon}(^1P)] \quad \text{та}$$

$\psi_{1P}(E) = \int d\varepsilon [C_{21}U_{\varepsilon}(^3P) + C_{22}U_{\varepsilon}(^1P)]$ де $U_{\varepsilon}(^3P)$, $U_{\varepsilon}(^1P)$ – власні функції континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\varepsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\varepsilon p$ відповідно, $|C_{11}| > |C_{12}|$, $|C_{22}| > |C_{21}|$ – коефіцієнти змішування конфігурацій $U_{\varepsilon}(^3P)$, $U_{\varepsilon}(^1P)$, змінна інтегрування ε – енергія $2p$ -електрона у неперервному спектрі. Тоді, відношення перерізів збудження станів 1P та 3P термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації обчислювалося як [119]

$$\frac{\sigma(^3P)}{\sigma(^1P)} = \frac{\int \left| \langle \psi_{3P}(\varepsilon) | \psi(1s^{-1}(^2S)) \rangle \right|^2 d\varepsilon}{\int \left| \langle \psi_{1P}(\varepsilon) | \psi(1s^{-1}(^2S)) \rangle \right|^2 d\varepsilon}, \quad (4.3)$$

де $\psi(1s^{-1})$ – початковий стан атому з $1s^{-1}$ вакансією.

Важливою особливістю розглянутої моделі є врахування як міжканальних переходів $\psi_{3P}(E) - \psi_{1P}(E)$, так і переходів у кожному каналі, зумовлених змішуванням конфігурацій, яке задається коефіцієнтами $|C_{11}| > |C_{12}|$, $|C_{22}| > |C_{21}|$. На наш погляд, при формуванні вказаних континуумів виконуються більш жорсткі умови $|C_{11}| \gg |C_{12}|$ та $|C_{22}| \gg |C_{21}|$, тобто змішування конфігурацій у межах каналу є несуттєвим. Це зумовлено тим, що межі інтегрування по енергії ε у кристалах суттєво звужуються, а саме, нижня межа інтегрування зростає від нуля до одиниць і, навіть, десятків еВ. У металах екранування внутрішньої вакансії вільними електронами (екранування Томаса-Фермі) призводить до того, що $2p$ -електрон у неперервному спектрі взаємодіє з атомним двовакансійним станом $1s^{-1}2p^{-1}$ тільки протягом часу, за який не встигає повністю відбутися динамічне екранування цих двох атомних вакансій. Такому випадку відповідає кінетична енергія ε $2p$ -електрона, яку він має на відстані тільки

2 – 4 Å від центру атома. При зростанні локалізації заряду валентних електронів, яка відбувається по мірі зростання ефективного заряду атома, збільшується шлях, який $2p$ -електрон, перебуваючи у неперервному спектрі енергії, проходить у кристалі. Це відповідає зсуву верхньої межі значень енергії ε в область менших значень при інтегруванні по енергії ε у рівнянні (4.3).

Виходячи з вказаних особливостей іонізації атомів у кристалах, пропонується наступна модель врахування впливу хімічного зв'язку на відношення перерізів збудження 1P та 3P термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації, отже, і на відносні інтенсивності компонентів $K\alpha L^1$ спектрів $3d$ -елементів:

1. Для кожного з континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\varepsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\varepsilon p$ хвильові функції будуються тільки через власні хвильові функції континуумів, а саме

$$\Psi_{^3P}(E) = \int_{\varepsilon(R_{eff})}^{\varepsilon_{max}} U_{\varepsilon'}(^3P) d\varepsilon' \quad \text{та} \quad \Psi_{^1P}(E) = \int_{\varepsilon(R_{eff})}^{\varepsilon_{max}} U_{\varepsilon'}(^1P) d\varepsilon', \quad \text{де} \quad \varepsilon(R_{eff}) -$$

мінімальна кінетична енергія εp електрона, що визначається ефективним радіусом R_{eff} , тобто відстанню εp електрона від центру атома, у межах якої у кристалі відбувається взаємодія такого електрона з $1s^{-1}2p^{-1}$ – іонізованим атомом. Отже, внутрішньоканальна взаємодія не враховується.

2. Величина ефективного радіусу R_{eff} мінімальна у металах (2 – 4 Å) і зростає при локалізації заряду валентних електронів. Зростання ефективного радіусу R_{eff} відображується у зменшенні параметру $\varepsilon(R_{eff})$.

3. Враховується тільки міжканальна взаємодія, величина якої у кристалах визначається мінімальною енергією $\varepsilon(R_{eff})$. Тоді відношення перерізів збудження 1P та 3P термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації може бути обчислено за формулою

$$\frac{\sigma(^3P)}{\sigma(^1P)} = \frac{\int_{\varepsilon(R_{eff})}^{\varepsilon_{max}} \left| \langle U_{\varepsilon'}(^3P) | \psi(1s^{-1}) \rangle \right|^2 d\varepsilon'}{\int_{\varepsilon(R_{eff})}^{\varepsilon_{max}} \left| \langle U_{\varepsilon'}(^1P) | \psi(1s^{-1}) \rangle \right|^2 d\varepsilon'} , \quad (4.4)$$

При обчисленні матричних елементів $\langle U_{\varepsilon'}(^3P) | \psi(1s^{-1}) \rangle$ матричні елементи оператора міжканальної взаємодії визначалися слетеровськими інтегралами [162]. Однак, верхня границя інтегрування тепер дорівнює не нескінченності, а величині R_{eff} :

$$V_{1\varepsilon, 2\varepsilon'} = -\frac{3\sqrt{3}}{2} R^0(2p, \varepsilon p; \varepsilon' p, 2p) + \frac{1}{2\sqrt{3}} R^1(1s, \varepsilon p; \varepsilon' p, 1s) \quad (4.5a)$$

$$R^0(2p, \varepsilon p; \varepsilon' p, 2p) = \int_0^{R_{eff}} dr_1 \int_0^{R_{eff}} dr_2 \frac{1}{r_>} R_{2p}(r_1) R_{\varepsilon p}(r_2) R_{\varepsilon' p}(r_1) R_{2p}(r_2) \quad (4.5b)$$

$$R^1(1s, \varepsilon p; \varepsilon' p, 1s) = \int_0^{R_{eff}} dr_1 \int_0^{R_{eff}} dr_2 \frac{r_<}{r_>^2} R_{1s}(r_1) R_{\varepsilon p}(r_2) R_{\varepsilon' p}(r_1) R_{1s}(r_2) \quad (4.5b)$$

Обчислення за формулами (4.4) – (4.5) виконувалися з використанням нерелятивістських воднеподібних екранованих радіальних функцій $R_{1s}(r)$, $R_{2p}(r)$, $R_{\varepsilon p}(r)$ для $Z=22$. На рис. 4.4 наведено залежність величини $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$ від ефективного радіусу R_{eff} кулонівської взаємодії $2p$ електрона у неперервному спектрі з $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом (крива 1). На ньому ж представлено результати розрахунків у межах моделі [119], яка враховує як міжканальні, так і внутрішньоканальні переходи (крива 2). Як видно з рис. 4.4, значення відношення $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$, які відповідають запропонованій моделі, що враховує тільки міжканальну взаємодію (крива 1), у крайніх точках ($R_{eff} = 2 \text{ \AA}$ та $R_{eff} = 8 \text{ \AA}$) приймають значення, які відрізняються у 1,53 рази, тоді як значення цього відношення, обчислені за

моделлю [119] (крива 2) у вказаних точках відрізняються тільки 1,29 рази. Як впливає з нашого експерименту, при переході метал – оксид відносна інтенсивність χ змінюється у 1,6 – 1,9 рази. Таким чином, саме запропонована у дисертаційній роботі модель відображує більший діапазон

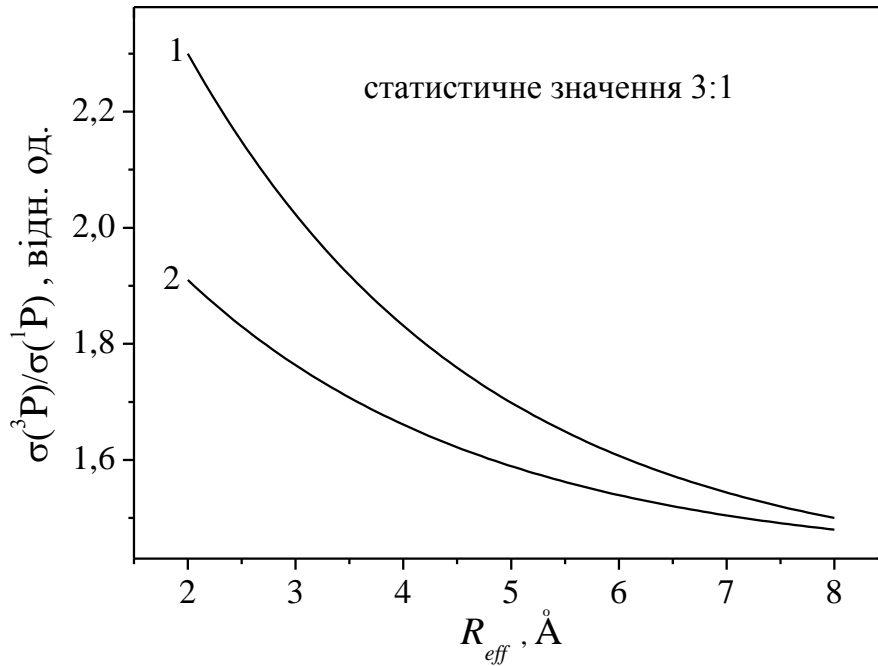


Рис. 4.4. Залежність відношення $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$ від ефективного радіусу екранування R_{eff} : 1 – без урахування внутрішньоканальної взаємодії; 2 – з урахуванням внутрішньоканальної взаємодії.

зміни відносної інтенсивності χ , а ніж модель [119], що у більшій мірі відповідає експерименту. Отже, можна вважати, що при двократній $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізації у кристалах основною є міжканальна взаємодія континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, величина якої визначається ефективним радіусом R_{eff} кулонівської взаємодії $2p$ електрона у неперервному спектрі (ϵp електрона) з $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом.

Таким чином, за умови електронного збудження $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr експериментально встановлено зменшення відносної інтенсивності $\chi = I(^3P)/I(^1P)$ при переході від металів до відповідних оксидів у 1,6 – 1,9

разів. В оксидах ванадію зростання ефективного позитивного заряду атому V, яке відображується зростанням енергії зв'язку $V 2p_{3/2}$ електронів, супроводжується монотонним зменшенням відносної інтенсивності χ від 2,43 до 1,8. Запропоновано модель такого ефекту, яка враховує міжканальну взаємодію континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, а ступінь локалізації валентних електронів у кристалах визначається ефективним радіусом взаємодії ежектованого $2p$ електрона з двократно $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом.

4.2. Характеристики $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al при електронному бомбардуванні

Вище було розглянуто властивості $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr при електронному бомбардуванні, зокрема, чутливість таких спектрів до зміни найближчого оточення атому, який випромінює. Не менш важливу інформацію про процеси кратної іонізації атомів містять $K\alpha L^2$ спектри, які випромінюються при радіаційних переходах в атомах з трьома внутрішніми вакансіями $^2P, ^4P, ^2D, ^2S(1s^{-1}2p^{-2}) - ^4S, ^2D, ^2P(1s^{-1}2p^{-2})$ (див. п.п. 1.2.3). Зокрема, відзначалося, що відносна інтенсивність групи $K\alpha L^2$ ліній $I(K\alpha L^2)/I(K\alpha_{1,2})$ $3p$ елементів Na, Mg, Al при електронному бомбардуванні майже у два рази перевищує розрахунок, виконаний у наближенні незалежного SO двох $2p$ електронів [95]. Така відмінність може бути зумовлена суттєвою роллю $2p$ електронних кореляцій при вильоті з атома двох $2p$ електронів у процесі триелектронної іонізації $1s^{-1}2p^{-2}$. У випадку чотириелектронної іонізації $1s^{-1}2p^{-3}$ з атома вілітає вже три повільних $2p$ електрони і йдеться про їх взаємодію з $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізованим атомом – відповідно. Одноелектронні переходи $1s^{-1}2p^{-3} - 2p^{-4}$ у таких чотирикратноіонізованих атомах супроводжуються випроміненням групи

$K\alpha L^3$ ліній, спектри яких відповідають одноелектронним переходам. Для з'ясування внеску вказаних кореляційних ефектів у роботах [154,163] було досліджено залежності імовірностей додаткової $2p^{-1}$ іонізації (P_1), додаткової $2p^{-2}$ іонізації (P_2) та додаткової $2p^{-3}$ іонізації (P_3) при утворенні первинної $2s^{-1}$ вакансії у атомах Si від енергії бомбардуючих електронів у діапазоні прискорюючих напруг 7 – 100 кеВ. Було встановлено, що експериментально визначені імовірності P_2 та P_3 перевищують значення, розраховані у наближенні миттєвого збурення, відповідно у $P_2 / P_2^{(SO)} = 1,4 - 1,9$ та $P_3 / P_3^{(SO)} = 3,2 - 4,3$ разів, що свідчить про суттєву кореляційних ефектів при первинній $2s^{-1}$ іонізації атому Si. Однак, у п. 4.1 було показано, що у процесах взаємодії повільного $2p$ електрона, який залишає атом у результаті SO процесу, з $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом, суттєву роль відіграє величина ефективного радіусу взаємодії R_{eff} , яка визначається екрануванням $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованого атому вільними електронами (метали) та електронами локалізованих іонно-ковалентних зв'язків (оксиди). Досліджений у роботах [154,164] кремній є ковалентним кристалом з чотирма локалізованими sp^3 -гібридизованими орбіталями, а радіус екранування заряду атома електронами провідності (екранування Дебая-Хюккеля) складає 8 – 10 Å, що перевищує міжатомну відстань більш ніж у тричі ($d(Si-Si)=2,35$ Å). Отже, можна очікувати, що у кристалах Si екранування взаємодії $2p$ електронів з $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізованими атомами є суттєво слабшим у порівнянні з металами, у яких, як відзначалося, $R_{eff} = 2 - 4$ Å.

Тому для перевірки ролі екранування взаємодії $2p$ електронів, які залишають атом у результаті SO процесу, з $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізованими атомами для металу алюмінію було виконано експериментальне дослідження відносної інтенсивності $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів при електронному бомбардуванні у діапазоні енергій електронів 4,5 – 100 кеВ з метою

визначення відносних імовірностей P_1 , P_2 та P_3 , а також порівняння цих значень як з передбаченими у моделі незалежного SO, так і отриманими раніше експериментальними даними для кристалів кремнію [154,164].

Методика отримання $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al при електронному бомбардуванні у діапазоні енергій електронів 4,5 – 100 кеВ наведена у п. 2.4. Визначалися відносні інтенсивності груп $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ ліній $\nu = I(K\alpha L^1)/I(K\alpha_{1,2})$, $\eta = I(K\alpha L^2)/I(K\alpha L^1)$ та $\xi = I(K\alpha L^3)/I(K\alpha L^1)$ як відношення площ, обмежених відповідними спектральними контурами. Групи $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ ліній виділялися із короткохвильового схилу $K\alpha_{1,2}$ ліній при апроксимації останніх двома амплітудними функціями Фойгта. Відносна похибка визначення величин η та ξ не перевищувала 5 – 8 %. На рис. 4.5 наведено типовий рентгенівський емісійний $K\alpha$ –спектр Al (a – $K\alpha_{1,2}$; b – $K\alpha L^1$; c – $K\alpha L^2$; d – $K\alpha L^3$), отриманий за прискорюючої напруги $U = 25$ кВ.

Для визначення відносних імовірностей P_1 , P_2 та P_3 представимо відносні інтенсивності $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ (з урахуванням результатів роботи [163,164]) у вигляді:

$$I(K\alpha_{1,2}) = \sigma_K (1 - P_1) \frac{\Gamma_{\alpha}^R}{\Gamma_K}, \quad (P_1 \gg P_2, P_3) \quad (4.6)$$

$$I(K\alpha L^1) = \sigma_K P_1 \frac{\frac{5}{6} \Gamma_{\alpha}^R}{a_1 \Gamma_K^A + k_1 \Gamma_K^R + \Gamma_L}, \quad (4.7)$$

$$I(K\alpha L^2) = \sigma_K P_2 \frac{\frac{2}{3} \Gamma_{\alpha}^R}{a_2 \Gamma_K^A + k_2 \Gamma_K^R + 2\Gamma_L}, \quad (4.8)$$

$$I(K\alpha L^3) = \sigma_K P_3 \frac{\frac{1}{2} \Gamma_{\alpha}^R}{a_3 \Gamma_K^A + k_3 \Gamma_K^R + 3\Gamma_L}, \quad (4.9)$$

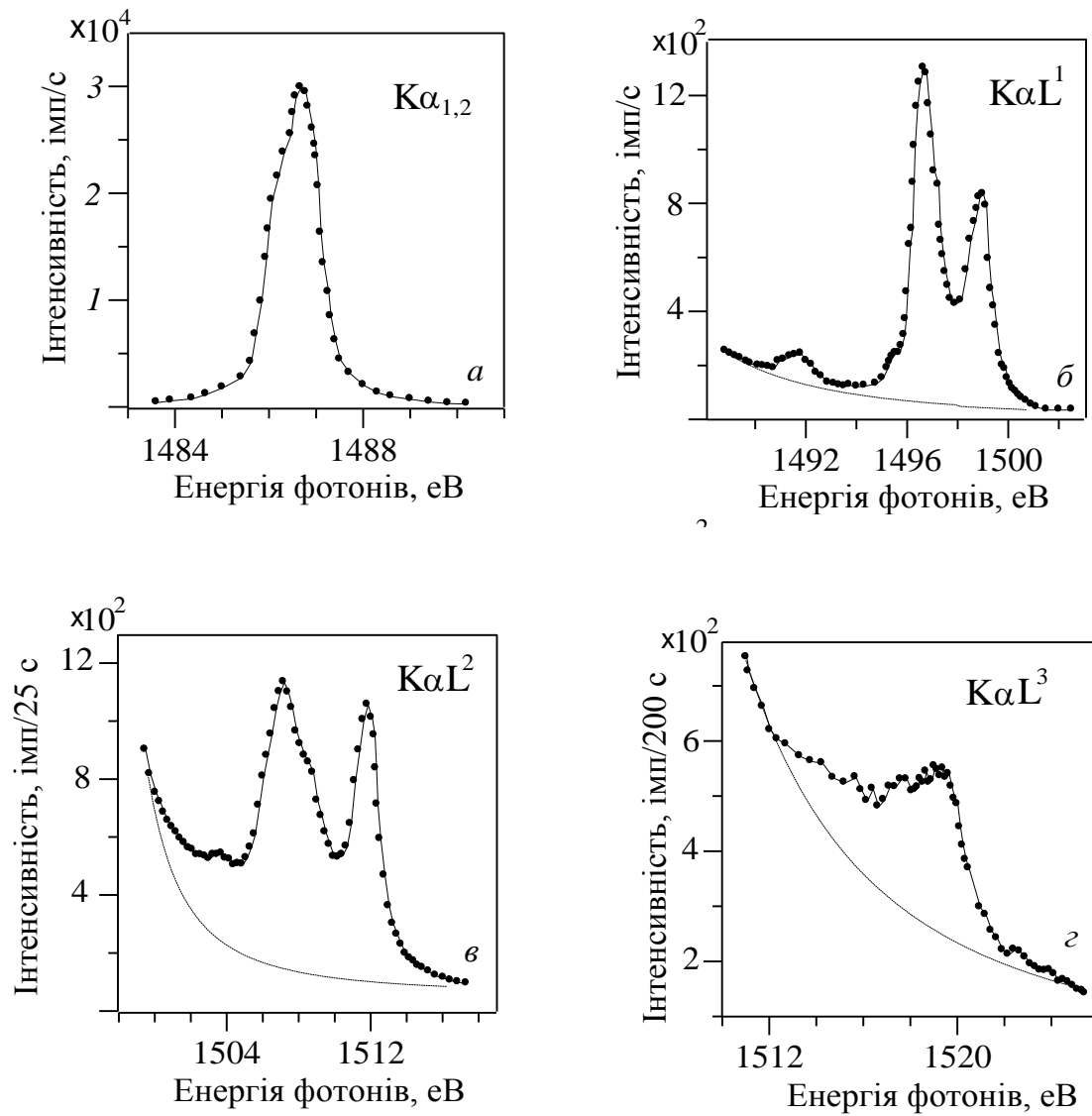


Рис. 4.5. Рентгенівський емісійний $K\alpha$ -спектр Al: $a - K\alpha_{1,2}$; $b - K\alpha L^1$; $c - K\alpha L^2$; $d - K\alpha L^3$

З рівнянь (4.6) – (4.9) отримаємо

$$P_1 = \frac{\nu}{\nu + G}, \quad P_2 = \eta P_1 N, \quad P_3 = \xi P_1 M \quad (4.10)$$

$$\text{де} \quad G = \frac{5}{6} \cdot \frac{\Gamma_K}{a_1 \Gamma_K^A + k_1 \Gamma_K^R + \Gamma_L}. \quad (4.11a)$$

$$N = \frac{5}{4} \cdot \frac{a_2 \Gamma_K^A + k_2 \Gamma_K^R + 2\Gamma_L}{a_1 \Gamma_K^A + k_1 \Gamma_K^R + \Gamma_L}; \quad M = \frac{5}{3} \cdot \frac{a_3 \Gamma_K^A + k_3 \Gamma_K^R + 3\Gamma_L}{a_1 \Gamma_K^A + k_1 \Gamma_K^R + \Gamma_L}. \quad (4.116)$$

У формулах (4.6) – (4.9) σ_K – переріз іонізації $1s$ оболонки; Γ_K and Γ_L – ширини K та $L_{2,3}$ рівнів; Γ_a^R – ширина радіаційного переходу $1s^{-1} - 2p^{-1}$; Γ_K^A , Γ_K^R – Оже та радіаційна складові ширини K рівня. Коефіцієнти $5/6$, $2/3$ та $1/2$ враховують зменшення кількості $2p$ електронів при зростанні кратності додаткової іонізації $2p$ підоболонки; коефіцієнти a_1, a_2, a_3 враховують зменшення Оже складової ширини Γ_K^A , а коефіцієнти $k_1 = 5/6; k_2 = 2/3, k_3 = 1/2$ – зменшення радіаційної складової ширини Γ_K^R при появі однієї, двох чи трьох додаткових вакансій у $2p$ підоболонці. Для визначення коефіцієнтів a_1, a_2, a_3 було використано значення швидкостей $KL_i L_j$ та $KL_i M_j$ Оже-переходів [164]. Для Al отримано відповідно $a_1 = 0,82; a_2 = 0,64; a_3 = 0,35$. У підсумку при використанні значень $\Gamma_K = 0,420$ eV, $\Gamma_L = 0,004$ eV [165], виходу флуоресценції $\omega_K = 0,039$ [166] обчислення за формулами (4.11a) та (4.11б) дають для Al наступні значення коефіцієнтів $G = 1,12, N = 0,47, M = 0,32$.

У табл. 4.3 представлено значення відносних інтенсивностей V, η, χ Al та обчислених за формулами (4.10) відносних імовірностей P_1, P_2 та P_3 , отримані при різних енергіях налітаючих електронів. На рис. 4.6 та 4.7 наведено залежності імовірностей P_2, P_3 Al від енергії бомбардуючих електронів. Для порівняння на рисунках також представлено експериментальні результати, отримані раніше для Si [154,163]. Як видно, для Al та Si залежності P_2, P_3 від енергії бомбардуючих електронів мають спадаючий характер, що може бути зумовлено зменшенням середньої енергії, яка передається атому при співударі з електроном. Звертає на себе увагу той

Таблиця 4.3

Параметри $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al при електронному збудженні.

Прискорююча напруга, кВ	Відносні інтенсивності			P_1 , $\times 10^{-2}$	P_2 , $\times 10^{-3}$	P_3 , $\times 10^{-5}$
	$V, \times 10^{-2}$	$\eta, \times 10^{-2}$	$\xi, \times 10^{-2}$			
4,5	10,4	8,3	2,8	8,5	3,3	7,6
7	9,9	8,5	3,0	8,1	3,1	7,8
11	9,8	8,1	3,1	8,0	3,1	7,7
17	9,5	8,2	3,1	7,8	2,9	7,7
25	8,8	7,9	3,0	7,3	2,7	6,9
50	8,1	8,2	2,9	6,7	2,5	6,1
75	7,0	8,3	3,1	5,9	2,2	5,6
100	6,5	8,1	3,0	5,5	2,1	5,4

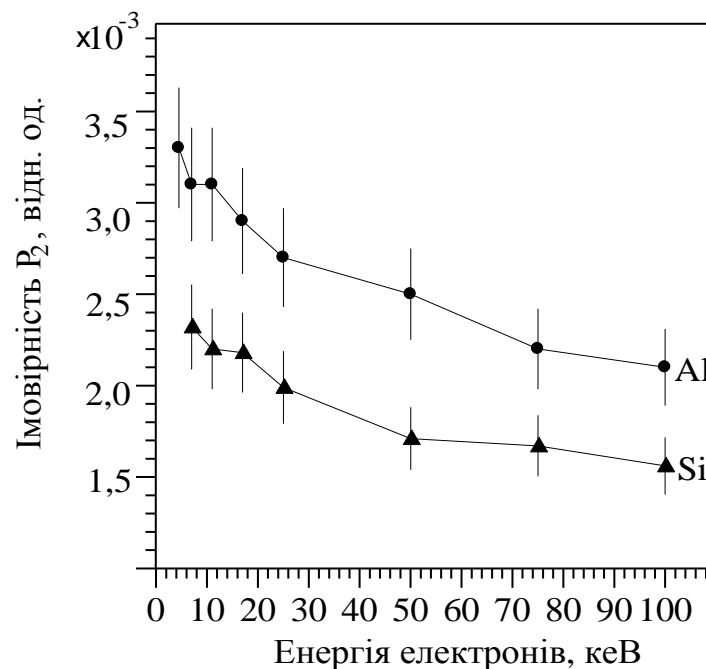


Рис. 4.6. Залежність відносної імовірності P_2 для Al (дана робота) та Si [154,163] від енергії бомбардуючих електронів.

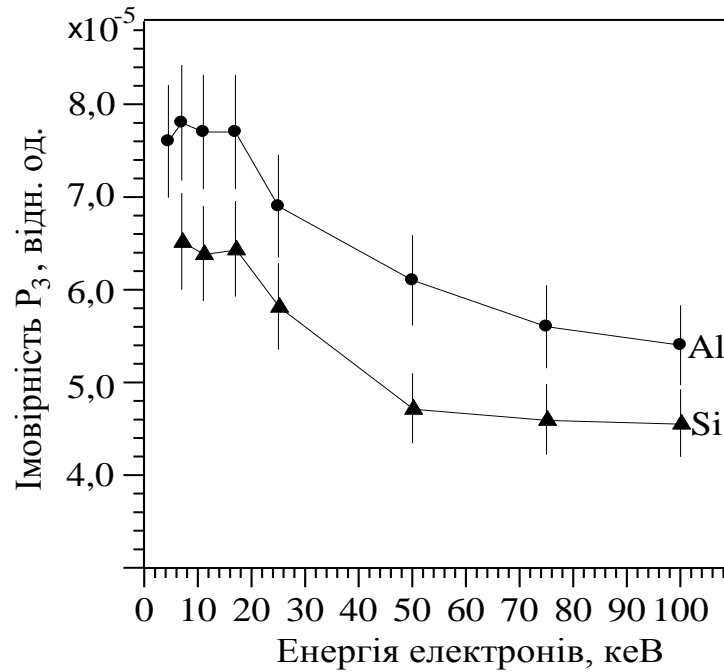


Рис. 4.7. Залежність відносної імовірності P_3 для Al (дана робота) та Si [154,163] від енергії бомбардуючих електронів.

факт, що значення параметрів P_2 , P_3 для Al відповідно у 1,4 та 1,2 рази вищі, а ніж у Si. Для подальшого аналізу важливо виконати порівняння значень P_2 , P_3 для Al та Si з їх розрахунками у наближенні незалежного «струшування» двох та трьох $2p$ електронів при SO процесі. Відповідні теоретичні значення визначаються за формулами $P_2^{(SO)} = (5/12)(P_1^{(SO)})^2$ та $P_3^{(SO)} = (5/54)(P_1^{(SO)})^3$ [163]. Приймаючи для Al $P_1^{(SO)} = 6,9 \cdot 10^{-2}$ [155,156], отримаємо $P_2^{(SO)} = 2,0 \cdot 10^{-3}$ та $P_3^{(SO)} = 3,1 \cdot 10^{-5}$. На рис. 4.8 та 4.9 для Al та Si представлено залежності відношень $P_2/P_2^{(SO)}$ та $P_3/P_3^{(SO)}$ від енергії бомбардуючих електронів. З рис. 4.8 видно, що для Al межі зміни відношення складають $P_2/P_2^{(SO)} = 1,1 - 1,7$, тоді як для Si $P_2/P_2^{(SO)} = 1,4 - 1,9$. Аналогічно, для Al межі зміни відношення $P_3/P_3^{(SO)}$ складають $P_3/P_3^{(SO)} = 1,7 - 2,5$, тоді як для Si $P_3/P_3^{(SO)} = 3,2 - 4,3$ (рис. 4.9).

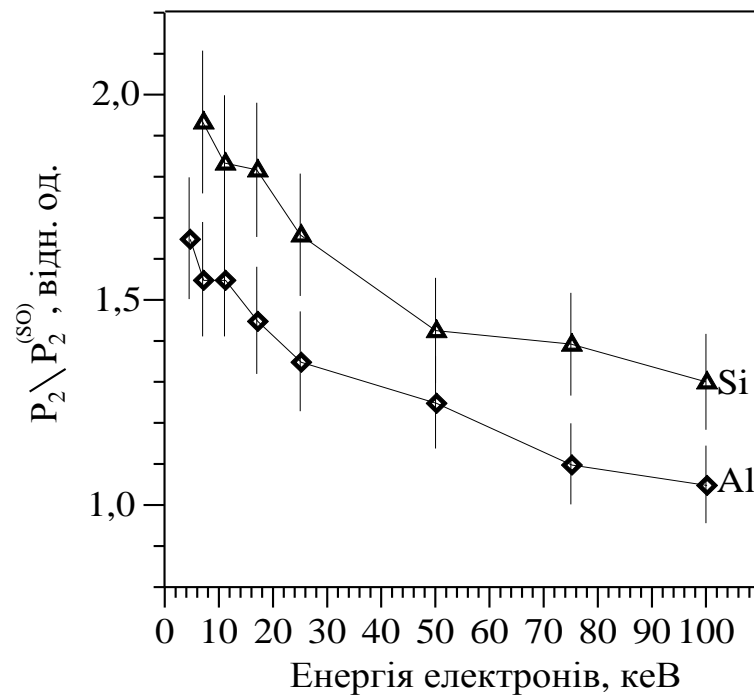


Рис. 4.8. Залежність відношення $P_2/P_2^{(SO)}$ для Al (дана робота) та Si [154,163] від енергії бомбардуючих електронів.

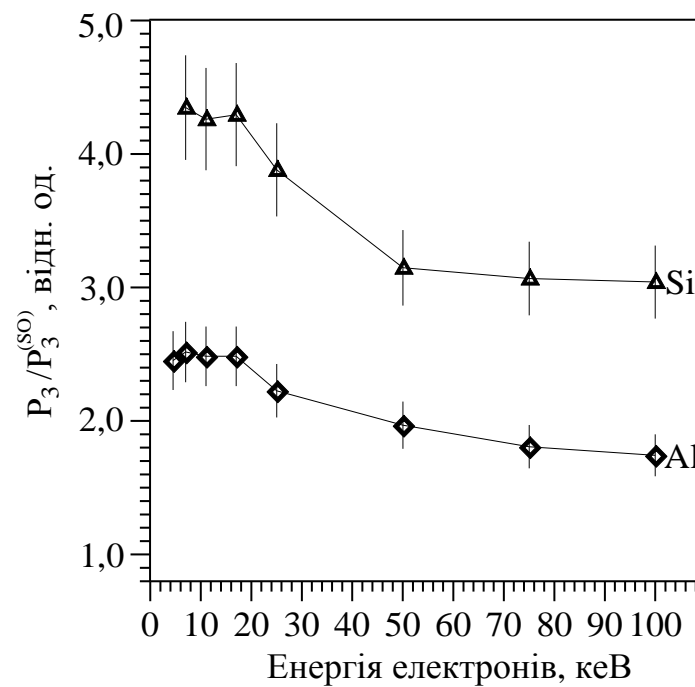


Рис. 4.9. Залежність відношення $P_3/P_3^{(SO)}$ для Al (дана робота) та Si [154,163] від енергії бомбардуючих електронів.

Отже, у металі Al значення імовірності додаткової двократної іонізації $2p$ підоболонки при утворенні первинної вакансії у $1s$ оболонці (конфігурація $1s^{-1}2p^{-2}$) відносно цієї ж величини, обчисленої у наближенні незалежного SO процесу для двох $2p$ електронів, у 1,2 рази менше, ніж у Si. Більш сильний ефект спостерігається для імовірності додаткової трикратної іонізації $2p$ підоболонки при утворенні первинної вакансії у $1s$ оболонці (конфігурація $1s^{-1}2p^{-3}$) відносно значення, обчисленого у наближенні незалежного SO процесу для трьох $2p$ електронів – для металу Al таке відношення у 1,7 разів менше, ніж для напівпровідника Si. Такий результат свідчить про те, що у металі перебіг процесів $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації краще описується у наближенні SO, а ніж у Si. Враховуючи той факт, що алюміній та кремній є сусідніми елементами у періодичній таблиці, важко пояснити такі відмінності Z -залежностями вказаних параметрів. На нашу думку, відмінність процесів $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації Al та Si зумовлена тим, що в алюмінії взаємодія двох повільних $2p$ електронів у неперервному спектрі з $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізованим атомом (або трьох повільних $2p$ електронів у неперервному спектрі з $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізованим атомом) помітно заекранована вільними електронами, тоді як в Si з локалізованими парноелектронними зв'язками така взаємодія є суттєвою сильнішою. Фактично, завдяки екрануванню міжканальної взаємодії кратна іонізація у металах краще описується у *shake-off* наближенні, а ніж у напівпровідниках та діелектриках з локалізованими електронними зв'язками.

Таким чином, експериментально встановлено, що імовірність утворення двох та трьох додаткових $2p$ вакансій при іонізації $1s$ оболонки електронним ударом відносно імовірності таких процесів у наближенні миттєвого збурення для металу алюмінію у 1,2 – 1,7 разів менша, ніж для напівпровідника кремнію. Отриманий результат свідчить, по-перше, про значну роль взаємодії конфігурацій $1s^{-1}2p^{-2}(^M X_J) 2\epsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації та $1s^{-1}2p^{-3}(^M X_J) 3\epsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації Al та Si, по-друге, про

суттєве екранування такої взаємодії вільним електронним газом у металі Al порівняно з напівпровідником Si. Отже, при побудові теоретичної моделі $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації обов'язково повинно враховуватися екранування іонізованого атому вільними електронами. Можливий шлях тут також пов'язаний з введенням ефективного радіусу взаємодії R_{eff} так, як це було виконано у п. 4.1.

Висновки розділу 4

1. За умови електронного збудження $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr експериментально встановлено зменшення відносної інтенсивності $\chi = I(^3P) / I(^1P)$ при переході від металів до відповідних оксидів у 1,6 – 1,9 рази. Показано, що в оксидах ванадію у ряду $V_2O_3 - VO_2 - V_2O_5$ зростання ефективного позитивного заряду атому V, яке відображується зростанням енергії зв'язку V $2p_{3/2}$ електронів, супроводжується монотонним зменшенням відносної інтенсивності χ від 2,43 до 1,8.

2. Запропоновано модель ефекту зменшення відносної інтенсивності $\chi = I(^3P) / I(^1P)$ у $K\alpha L^1$ спектрах, яка враховує міжканальну взаємодію континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, а вплив локалізації валентних електронів у кристалах враховується введенням ефективного радіусу взаємодії електрона з двократно $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом.

3. При електронному збудженні $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al у діапазоні енергій бомбардуючих електронів 4,5 – 100 кеВ експериментально визначено імовірності утворення двох (P_2) та трьох (P_3) додаткових $2p$ вакансій при іонізації $1s$ оболонки. Виконано порівняння вказаних величин зі значеннями, обчисленими у моделі незалежного викиду $2p$ електронів за рахунок SO

процесу. Виявлено, що для металу Al величина $P_2 / P_2^{(SO)}$ у 1,2 разів менша, а величина $P_3 / P_3^{(SO)}$ у 1,7 разів менша, ніж для напівпровідника кремнію.

4. Зменшення величин $P_2 / P_2^{(SO)}$ та $P_3 / P_3^{(SO)}$ в алюмінії відносно їх значень у кремнії свідчить про значну роль екранування вільними електронами взаємодії електронних конфігурацій $1s^{-1}2p^{-2}(^M X_J) 2\epsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації та конфігурацій $1s^{-1}2p^{-3}(^M X_J) 3\epsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації у металі Al порівняно з екрануванням такої взаємодії локалізованими валентними електронами у Si.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ І ВИСНОВКИ

1. Для виконання досліджень спектрально-кутових характеристик ПРВ при розповсюдженні високоенергетичних електронів з енергією 7 МеВ у кристалах на базі експериментальної установки «Рентген 1» розроблено та відпрацьовано методику збудження та реєстрації ПРВ у геометрії зворотного розсіювання, зокрема, в області кутів спостереження 150° – 180° відносно напрямку розповсюдження електронного пучка. Це дозволило забезпечити рівень сигналу в 1–3% від рівня загального радіаційного фону, що достатньо для достовірної реєстрації спектрів ПРВ при відповідному виборі часу накопичення у каналі реєстрації.

2. Теоретично передбачено можливість звуження конусу ПРВ та зростання кутової густини ПРВ при розповсюдженні релятивістських електронів у тонких кристалах в області малих кутів ковзання електронного пучка відносно поверхні мішені. Ефект може бути використаний при створенні мішеней для контрольованого формування конусів ПРВ.

3. Експериментально визначено спектрально-кутові розподіли інтенсивності ПРВ при розповсюдженні високоенергетичних електронів у монокристалічному кремнії та ВОПГ у геометрії зворотної реєстрації ($\theta = 180^{\circ}$). При нормальному падінні пучка електронів на фізичну поверхню (110) Si зареєстровано спектри ПРВ, що містять максимуми (220), (440) та (660), а при нормальному падінні на фізичну поверхню (001) ВОПГ — максимуми (002), (004), (006) та (008), енергії яких з точністю до 0,5% збігаються зі значеннями, обчисленими у кінематичному наближенні.

4. Виявлено, що кутові орієнтаційні залежності інтенсивності максимумів (220) Si та (002) ВОПГ містять два симетричних максимуми, які відображують переріз конусу ПРВ перпендикулярною до осі конусу площиною. Виявлена розбіжність між експериментально визначеним кутовим розхилом конусу ПРВ та передбачуваним у кінематичному

наближенні, яка складає для Si та ВОПГ $2,8^\circ$ та $1,5^\circ$ відповідно. Причина розбіжності може бути зумовлена ефектами динамічної дифракції, які проявляються при зростанні структурної досконалості кристалів.

5. Експериментально показано, що при розповсюдженні пучка високоенергетичних електронів у порошкових зразках алмазу з розмірами кристалітів $d = 0,3\text{--}42$ мкм при реєстрації в задній напівсфері ($\theta = 151^\circ$) відношення інтенсивностей максимумів ПРВ (111) та (220) зменшується при зростанні розмірів кристалітів алмазу. Зокрема, при переході від частинок з лінійними розмірами $d = 0,3$ мкм до частинок з $d = 6$ мкм таке зменшення складає 1,9 рази. Залежність відношення інтенсивностей максимумів ПРВ від розмірів кристалітів визначається ефектом первинної екстинції при дифракції ПРВ у блоках когерентного розсіювання кінцевих розмірів. Чутливість відношення інтенсивностей ліній ПРВ до розмірів кристалітів може бути покладена в основу нового методу оцінки розмірів мікро- та наночастинок.

6. За умови збудження $K\alpha L^1$ спектрів Ti, V та Cr електронним пучком (25 кеВ) експериментально встановлено зменшення відносної інтенсивності $I(^3P)/I(^1P)$ при переході від металів до відповідних оксидів у 1,6–1,9 рази. Показано, що в оксидах ванадію у ряду $V_2O_3 - VO_2 - V_2O_5$ зростання ефективного позитивного заряду атому V супроводжується монотонним зменшенням відносної інтенсивності χ від 2,4 до 1,8.

7. Запропоновано модель ефекту зменшення відносної інтенсивності $I(^3P)/I(^1P)$ у $K\alpha L^1$ спектрах, яка враховує тільки міжканальну взаємодію континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$, а вплив локалізації валентних електронів у кристалах враховується введенням ефективного радіусу взаємодії електрона $2p$ електрона з двократно $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом.

8. При збудженні $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al електронами у діапазоні енергій 4,5–100 кеВ експериментально визначено імовірності

утворення двох (P_2) та трьох (P_3) додаткових $2p$ вакансій при іонізації $1s$ оболонки. Порівняння вказаних величин зі значеннями, обчисленими у моделі незалежного викиду $2p$ електронів за рахунок SO процесу, виявило, що для металу Al величина $P_2 / P_2^{(SO)}$ у 1,2 рази менша, а величина $P_3 / P_3^{(SO)}$ у 1,7 рази менша, ніж для напівпровідника кремнію. Зменшення величин $P_2 / P_2^{(SO)}$ та $P_3 / P_3^{(SO)}$ в алюмінії відносно їх значень у кремнії свідчить про значну роль екранування вільними електронами взаємодії електронних конфігурацій $1s^{-1}2p^{-2}(^M X_J) 2\varepsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-2}$ іонізації та конфігурацій $1s^{-1}2p^{-3}(^M X_J) 3\varepsilon p$ при $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації у металі Al порівняно з екрануванням такої взаємодії локалізованими валентними електронами у Si.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Алексеев В.И. Исследование механизмов генерации рентгеновского излучения при взаимодействии релятивистских электронов с веществом на установке “РЕНТГЕН 1” / В.И. Алексеев, В.А. Астапенко, А.Н. Елисеев, Э.Ф. Иррибарра, В.А. Карпов, И.А. Кишин, Ю.А. Кротов, А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмудинов, М.АМ. Аль-Омари, С.В. Сахно // Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques. – 2017. – т. 11, № 4–Р. 13–18.
2. Кишин И. А. Эффект трансформации конуса излучения Вавилова–Черенкова при влёте релятивистского электрона в слой вещества / И. А. Кишин, А. С. Кубанкин, Т. Б. Никуличева, М.АМ. Аль-Омари, А. В. Сотников, А. С. Старовойтов // Ядерная физика и инжиниринг.– 2016. – т. 7. – № 1. – Р. 47–52.
3. Al-Omari M.AM., The generation features of parametric X-ray radiation in micro sized diamond powders / M.AM. Al-Omari and N.A. Borovoy // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. – 2017. – № 4. – С. 171–174.
4. Аль-Омари М.АМ. Вплив зарядового стану атома на інтенсивність рентгенівської $K\alpha L1$ -емісії Ti та Cr / М.АМ. Аль-Омарі, М. О. Боровий // Металлофиз. новейшие технол. – 2018. – т. 40. – № 3. – Р. 301–310.
5. Al-Omari M.AM. The $K\alpha L1$, $K\alpha L2$ and $K\alpha L3$ X-ray emission of aluminium under electron impact / M.A.M. Al-Omari and N.A. Borovyi // Металлофиз. новейшие технол. – 2018. – т. 40. – № 5. – Р. 585–592.
6. Alexeyev V.I Parametric X-ray radiation in the backward geometry under interaction of relativistic electrons with crystals / V.I. Alexeyev, A.N. Eliseyev, E. Irribarra, V.A. Karpov, I.A. Kishin, A.S. Kubankin, R.M. Nazhmudinov, M. AM. Al-Omari // The 7th International Conference – Channeling 2016, Charged & Neutral Particles Channeling Phenomena, Capri (Naples) SIRMIONE-DESENZANO DEL GARDA (Italy), September 25–30, 2016.
7. Alexeyev V.I. Parametric X-ray radiation from powders with different grain size / V.I. Alexeyev, V. V. Astapenko, A.N. Eliseyev, E. Irribarra, V.A. Karpov,

- I.A. Kishin, Yu. Krotov, A.S. Kubankin, R.M. Nazhmudinov, M. AM. Al-Omari, S. Sakhno // The 7th International Conference – Channeling 2016, Charged & Neutral Particles Channeling Phenomena. Capri (Naples) SIRMIONE-DESENZANO DEL GARDA (Italy), September 25–30, 2016.
8. Кубанкин А.С. Источник вакуумного ультрафиолета и мягкого рентгена на основе взаимодействия пучка быстрых электронов с плоской мишенью в скользящей геометрии / А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмуудинов, В.И. Сергиенко, М.АМ. Аль-Омари, Х. Нгуен, Т. Фам, И.А. Кишин // Тезисы докладов XLV международной Тулиновской конференции по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, Москва, 26 – 28 мая 2015. – С. 53.
9. Кишин И. А. Параметрическое рентгеновское излучение релятивистских электронов в области аномальной дисперсии / И. А. Кишин, В.И. Алексеев, А. Н. Елисеев, Э. Иррибарра, А.С. Ключев, А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмуудинов, М. АМ. Аль-Омари // Сборник тезисов 22 Всероссийской научной конференции студентов физиков и молодых ученых, Ростов-на Дону, 21-28 апреля 2016 г.
10. Алексеев В.И. Параметрическое рентгеновское излучение релятивистских электронов в области аномальной дифракции / В.И. Алексеев, А.Н. Елисеев, Э. Иррибарра, И.А. Кишин, А.С. Кубанкин, Р.М. Нажмуудинов, И.С. Никулин, М.АМ. Аль-Омари // Сборник тезисов XLV международной Тулиновской конференции по Физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, г. Москва, 31 мая – 2 июня 2016. – С. 52.
11. Al-Omari M.AM. The Double-Electron KL2,3 ionization of Silicon Atoms at the electron impact near-threshold / M.AM. Al-Omari and N.A. Borovoy // Book of Abstracts, Eighteenth International Young Scientists Conference Devoted to 95th Anniversary of Professor M. U. Bilyi Optics & High Technology Material Science, SPO-2017, 37 - Section A PHYSICS OF CONDENSED MATTER AND SPECTROSCOPY AP.57. Kyiv, Ukraine, October 26–29, 2017. – P. 142.
12. Амусья М. Я. Поляризационное тормозное излучение частиц и атомов / М. Я.Амусья, С. М. Буймистров, Б. А. Зон и др. М // Наука–1987.– С. 334.

13. Nasonov N.N. Collective effects in the polarization bremsstrahlung of relativistic electrons in condensed media / N.N. Nasonov // Nuclear Instruments and Methods in Phys. Research B—1998. — т. Vol. 145.— P. 19–24.
14. Зон Б.А. / Б.А Зон // ЖЭТФ—1979. — т. 77, — P. 44–51.
15. Amusia M.Ya. / M.Ya.Amusia, A.V. Korol // Phys. Lett. A—1994. — т. 186— P. 230–234.
16. Gerchikov L.G. / L.G., Gerchikov A.V. Solov'yov // Z.Phys D —1997. — т. 42 — P. 279–287.
17. Connerade J.P. / J.P.Connerade, A.V. Solov'yov // J Phys. B: At. Mol. Opt Phys—1996. — т. 29— P. 3529–3547.
18. Gerchikov L.G. / L.G.Gerchikov, A.N. Ipatov, A.V. Solov'yov // J, Phys.B:At.Mol Opt.Phys—1998. — т. 30 —P. 5939–5959.
19. Gerchikov L.G. / L.G. Gerchikov, A.N. Ipatov, A.V. Solov'yov // Mol.Mat—1998. — т. 11— P. 71–76.
20. Amusia M.Ya. / M.Ya. Amusia, A.V.Korol, A.V. Solov'yov // Z. Phys. D —1986. — т. 1— P. 347.
21. Amusia M.Ya. / M.Ya Amusia., A.V. Solov'yov // J. Phys. B,At. Mol. Opt. Phys —1985. — т. 18— P. 3663.
22. Франк И.М. Излучение Вавилова-Черенкова. Вопросы теории / И.М. Франк // Наука—1988. — Москва.
23. Зрелов В.Х. Излучение Вавилова-Черенкова и его применение в физике высоких энергий / В.Х. Зрелов // Атомиздат—1968. — Москва.
24. Файнберг Я.Б. / Я.Б.Файнберг, Н.А. Хижняк // ЖЭТФ, —1957. — т. 32— P. 883–895.
25. Garibian G.M. / G.M.Garibian, C. Yang // Nucl. Instr. and Meth. A —1986. — т. 248 — P. 29–30.
26. Буц В.А./ В.А.Буц, Н.А. Хижняк // Плазменная электроника. Под ред. Курилко В.И., Наукова думка, —1989. — Киев1989 — P. 78–89.
27. Файнберг Я.Б. / Я.Б.Файнберг, Н.А.Хижняк // Плазменная электроника. Под ред. Курилко В.И., Наукова думка —1989. — P. 278–291.
28. Тер-Микаелян М.Л. / Тер-Микаелян М.Л. // УФН — 2001. — т. 171 — P. 597–624.

29. Тер-Микаелян М. Л. Влияние среды на электромагнитные процессы / М. Л. Тер-Микаелян // Издательство Академии наук Армянской ССР, Ереван 1969.
30. Барышевский В. Г. / В. Г. Барышевский, И. Д. Феранчук // ЖЭТФ–1973. – т. 64 – № 2. – Р. 760.
31. Барышевский В. Г. / В. Г. Барышевский, И. Д. Феранчук // Докл. АН БССР.–1974. – т. 18 – № 6.– Р. 499–502.
32. Гарибян Г. М. / Г. М. Гарибян, Ян Ши // ЖЭТФ. –1971.– т. 61– № 3(9) – Р. 930–943.
33. Гарибян Г. М. / Г. М. Гарибян, Ян Ши // ЖЭТФ–1972 – т. 63– № 4(10). – Р. 1198–1211.
34. Shchagin A.V. Parametric X-rays / A.V. Shchagin and X.K. Maruyama // Accelerator-based Atomic Physics Techniques and Applications, edited by S.M. Shafroth and J.C. Austin (AIP, New York) –1997.– т. 9– № 759. – Р. 279–307.
35. Гоголев А.С. Источник параметрического рентгеновского излучения с регулируемой длиной волны / А.С. Гоголев, А.П. Потылицын // Журнал технической физики –2008. – т. 78– № 11. –Р. 65–71.
36. Базылев В. А. Излучение быстрых частиц в веществе и во внешних полях / В. А. Базылев, Н. К. Жеваго // М.: Наука, –1987. –
37. Shchagin A. V. / A. V. Shchagin // Radiation Phys, Chem. 61, –2001. – Р. 283.
38. Shchagin A. V. / A. V. Shchagin, N. A. Khizhnyak // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res –1996. – Р. 119–115.
39. Франк И. М. / И. М. Франк., I. M. Frank, Sov. // Phys. Usp. УФН 87 189 –1966. – т. 8–№ 729.
40. Ginzburg V. Г. Transition Radiation and Transition Scattering / V. Г. Ginzburg, V. N. Tsytovich // Bristol: A. Hilger, –1990. –
41. Born M. / M. Born, E. Wolf // Principles of Optics, Oxford: Pergamon Press, –1968.
42. Борн М. / М. Борн, Э Вольф // М.: Наука, –1973. –
43. Жданов Г. С. Дифракционный и резонансный структурный анализ / Г. С. Жданов, А. С. Илюшин, С. В. Никитина // М.: Наука, –1980. –

44. Shchagin A. V. Electron-Photon Interaction in Dense Media / A. V. Shchagin // NATO Science Series, Ser. II –2002. –Vol. 49 – Ed. H Wiedemann, Dordrecht: Kluwer Acad. Publ, – P. 133.
45. Hugh D. / D. Hugh Young., A.. Roger, Freedman et al // Sears' and Zemansky's University Physics, Pearson Ed. & Addison-Wesley–2008. – т. 12,
46. Shchagin A.V. / A.V. Shchagin // Phys. Lett. A 262 –1999. – P. 383–388.
47. Щагин А.В. Коэффициенты Френеля для параметрического рентгеновского (черенковского) излучения / А.В. Щагин // успехи физических наук –2015. – т.185, № 8 – P. 885–894.
48. Blazhevich S. Polarization bremsstrahlung of relativistic electrons in aluminium / S. Blazhevich, A. Chepurinov, V. Grishin, B. Ishkhanov, N. Nasonov, V. Petukhov, et al. // Physics Letters, Section A: General, Atomic and Solid State Physics –1999. – № 254 – P. 230–232.
49. Блажевич С.В. Рамки применимости кинематического подхода в описании параметрического рентгеновского излучения релятивистских электронов в кристаллах / С.В. Блажевич, А..В. Носков // Научные ведомости Серия Математика. Физика–2010. – т. 11(82) –№ 19– P. 5–20.
50. Nitta H. / H Nitta // Phys.Lett.A –1991. – № 158–, P. 270.
51. Feranchuk I.D. / I.D. Feranchuk, A.V. Ivashin // J.Physique –1985. – № 46, P. 1981.
52. Барышевский В.Г. / В.Г. Барышевский, И.Д. Феранчук // ЖЭТФ–1971. – № 61–P. 944.
53. Baryshevsky V.G. / V.G. Baryshevsky, I.D. Feranchuk // J.Physique–1983. – № 44– P. 913.
54. Kubankin A.S. / A.S. Kubankin, N.N. Nasonov, V.I. Sergienko, I.V. Vnukov // Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res B–2003. – № 201– P. 97.
55. Nasonov N.N. / N.N. Nasonov, A.V. Noskov // Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. B–2003. – № 201– P. 67.
56. Blazhevich S.V. / S.V. Blazhevich, A.V. Noskov // Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. B–2006. – № 252 – P. 69.
57. Blazhevich S.V. / S.V. Blazhevich, A.V. Noskov // Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. B –2008. – № 266– P. 3770–3777.

58. Алейник А.Н. / А.Н. Алейник, А.Н. Балдин, Е.А. Богомазова, И.Е. Внуков и др., // Письма в ЖЭТФ–2004. – № 80– Р. 447.
59. Пинскер З.Г. Динамическое рассеяние рентгеновских лучей в идеальных кристаллах / З.Г. Пинскер // М.: Наука–1974. – Р. 372.
60. Didenko A.N. Observation of monochromatic X-ray radiation from 900 MeV electrons transmitting through a diamond crystal / A.N. Didenko, B.N. Kalini, N. S. Pak et al // Phys. Lett. A –1985. –№ 110 – Р. 177–179.
61. Адейшвили Д.И. Жесткого рентгеновского излучения электронов высокой энергии в кристалле под углом Брэгга / Д.И Адейшвили., С.В. Блажевич, В.Ф Болдышев. и др // ДАН СССР–1988. – № 298– Р. 844–846.
62. Касьян С.В. Ориентационная зависимость выхода параметрического рентгеновского излучения / С.В.Касьян, В.Л. Мороховский, В.И. Приступа, А.В. Щагин // Материалы XVIII Симпозиума по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами. МГУ. Москва. Май –1988. –Р. 77–79.
63. Мороховский В.Л. Исследование свойства когерентности параметрического излучения / В.Л. Мороховский, А.В. Щагин // ЖТФ–1990. – № 60– Р. 147–150.
64. Мороховский В.Л. Ориентирование монокристаллов в пучке электронов с энергией 10–1000 МэВ / В.Л. Мороховский, А.В. Щагин // ПТЭ –1989. – № 3–Р. 36–38.
65. Адейшвили Д.И. Установка для исследования спектрально-угловых характеристик рентгеновского излучения релятивистских электронов средних энергий в монокристаллах / Д.И. Адейшвили, С.В. Блажевич, Г.Л. Бочек, В.И. Кулибаба, В.П. Лапко, В.Л. Мороховский, Г.Л. Фурсов, А.В. Щагин // ПТЭ–1989. – № 3 (Поправку см. ПТЭ. 1989,6, с.4)– Р. 50–52.
66. Adishchev Yu.N. Measurement of spectral and polarization characteristics of parametric X-rays in a Si crystal / Yu.N.Adishchev, V.A Verzilov., A.P. Potylitsyn et. Al // NIM–1989. –№ В 44– Р. 130–136.
67. Адищев Ю.Н. Экспериментальное обнаружение линейной поляризации параметрического рентгеновского излучения / Ю.Н. Адищев, В.А Верзилов., С.А. Воробьев и др, // Письма в ЖЭТФ–1988. – № 48 – Р. 311–314.

68. Авакян Р.О. Экспериментальное исследование квазичеренковского излучения электронов с энергией 4,5 ГэВ в алмазе / Р.О. Авакян, А.Э. Аветисян, Ю.Н. Адищев и др. // Письма в ЖЭТФ–1987. – № 45– Р. 313–316.
69. Fiorito R.B. Observation of high order parametric X-ray spectra in mosaic graphite and single silicon crystals / R.B.Fiorito, D.W.Rule, X.K. Maruyama et al // Phys. Rev. Lett B. –1993. – № 79–Р. 704–707.
70. Fiorito R.B. Parametric X-ray generation from moderate energy electron beams / Fiorito R.B., Rule D.W., Piestrup M.A. et al. // NIM. –1993. – № B 79–Р. 758–761.
71. Fiorito R.B. Polarized angular distributions of parametric x radiation and vacuum-ultraviolet transition radiation from relativistic electrons / R.B. Fiorito, D.W. Rule, M.A. Piestrup, X.K. Maruyama, R.M. Silzer, D.M. Skopik, A.V. Shchagin // Phys. Rev. E–1995. – № 51 – Р. 2759–2762.
72. Asano S. I. How intense is parametric X radiation / Asano S., I. Endo, Harada M., S. Ishii, T. Kobayashi, T. Nagata, M. Muto, K. Yoshida, H. Nitta. // Phys. Rev. Lett. –1993. – № 70 – Р. 3247–3250.
73. Freudenberger J. Parametric X-ray radiation in diamond at low electron energies / J. Freudenberger, V.B. Gavrikov, M. Galemann et. Al. // Phys. Rev. Lett. –1995. – № 74 – Р. 2487–2490.
74. Гавриков В. Б. Исследование параметрического рентгеновского излучения (типа Б), генерируемого на электронных пучках средних энергий / В. Б. Гавриков // Харьковский Государственный Университет, Кандидатская диссертация, г.Хорьков–1996.
75. Гоглев А.С. Генерация параметрического рентгеновского излучения умеренно релятивистскими заряженными частицами / А.С. Гоглев // кандидатская диссертация томского технического университета, г.Томск, –2008.
76. Tanaji Sen. Презентация of Parametric X-Ray Radiation / Tanaji Sen // Simulation, Lee Teng Summer Internship Program, в ПЭМ [Internet], № Available from: <https://eddata.fnal.gov/lasso/summerstudents/> , cited– 2014 08/06.
77. Алексеев В. И. Обнаружение когерентных пиков поляризационного тормозного излучения релятивистских электронов в поликристалле в

- геометрии обратного рассеяния / В. И. Алексеев, К. А. Вохмянина, А. Н. Елисеев и др. // Письма в журн. техн. физики–2012. – т. 38– № 6 –Р. 83–89.
78. Алексеев В. И. Диагностика нанодисперсных поликристаллов на основе поляризационного тормозного излучения релятивистских электронов / В. И. Алексеев, А. Н. Елисеев, Э. Ф. Иррибарра и др. // Поверхность. Рентген., синхротрон и нейтрон. исслед. –2014. – № 4 – Р. 46–49.
79. Астапенко В. А. Экспериментальное измерение поляризационного тормозного излучения релятивистских электронов в поликристаллических мишенях / В. А. Астапенко, А. С. Кубанкин, Н. Н. Насонов и др. // Письма в журн. эксперимент. и теорет. Физики. –2006. – т. 84– № 6 – Р. 341–344.
80. Гостищев Н.А. / Н.А. Гостищев, А.С. Кубанкин, Н.Н. Насонов и др. // Письма в ЖТФ –2008. – т. 34–№ 17 – Р. 78.
81. Dialetis D. // Phys. Rev. A –1978. – № 17– Р. 1113–1122.
82. Лапко В.П. / В.П.Лапко, Н.Н. Насонов // ЖТФ–1990.– № 60– Р. 160–162
83. Astapenko V. A. Anomalous peak in the spectrum of polarizational bremsstrahlung from relativistic electrons moving through a solid target // V.A. Astapenko, N. Nasonov, P. Zhukova // J. Phys. B: Atomic, Molecular a. Optical Phys –2007. – № 40 – Р. 1337–1346.
84. Alekseev V. I. Research of the polarization bremsstrahlung of relativistic electrons in polycrystalline targets / V. I. Alekseev, A. N. Eliseev, E. F. Irribarra, et al. // Nuclear Instruments a. Methods in Phys. Research B–2015. – № 342– Р. 47–51.
85. Luke C.L. A search for dynamic radiation from crystals / C.L. Luke, Yuan, P.W. Alley, A. Bamberger et al. // NIMA–1985. – № 234 – Р. 426.
86. Kochur A.G. Probabilities of multiple shake processes in sudden approximation / A.G. Kochur, A.G. Kochur, V.A. Popov // Journal of Physics B–2006. – т. 16–№ 39– Р. 3335–3344.
87. Саченко В. П. Сателлиты рентгеновских спектров / В. П. Саченко, В. Ф. Демехин // Журнал экспериментальной и теоретической физики–1965. – т. 3(9) –№ 3(9) – Р. 765–769.
88. Åberg T. Theory of X-Ray Satellites / T. Åberg // Physical Review–1967. – т. 156– № 1– Р. 35–41.

89. Bete H. Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie / Bete H. // *Annalen der Physik* –1930. – т. 397–№ 1 – P. 325 –400.
90. Campos C.S. Analitical expression for K– and L–shell cross sections of neutral atoms near ionization threshold by electron impact / C.S. Campos, M.A.Z Vaskoncellos, J.C. Trincavelli, et al. // *Journal of Physics B*–2007. – № 40 – P. 3835–3841.
91. Hombourger C. An empirical expression for K–shell ionization cross section by electron impact / C. Hombourger // *Journal of Physics B*–1998. – т. 31– № 16– P. 3693–3702,
92. Демехин В.Ф. Спектральное положение $K\alpha$ – сателлитов / В.Ф. Демехин, В.П. Саченко // *Известия АН СССР. Серия физическая*–1967. – т. 31– № 6– P. 900–906.
93. Deutsch M. Energy shifts of $K\alpha$ x-ray satellites in low–Z atoms / M. Deutsch // *Physical Review A*–1989. –т. 39–№ 3– P. 1077–1081.
94. Mukherjee T. K. Non-Relativistic Two Electron Model for X-Ray Satellite Lines in Atoms / T. K Mukherjee, P. K.Mukherjee // *Physica Scripta* –1999. – т. 59–, № 3–P. 219–221.
95. Mikkola E. Determination of the $KL2 \rightarrow L3$ X-Ray Multiplet Structure in Na, Mg, and Al / E.Mikkola, O.Keski-Rahkonen, J.Lahtinen, et al.// *Physica Scripta* –1983. –т. 28– № 2– P. 188–192.
96. Keski-Rahkonen O. The $K\alpha$ and $K\beta$ X-Ray Spectra of Sodium in Metal and Some Compounds / O. Keski-Rahkonen, K. Reinikainen, K. Mikkola // *Physica Scripta*–1983. –т. 28–№ 2–P. 179–187.
97. Shigeoka N. Threshold excitation in Fe $K\alpha_{3,4}$ satellites / N.Shigeoka, H. Oohashi, Y. Ito, et al., // *Journal of Physics B*–2004. – т. 37– № 11– P. 2303–2309.
98. Natarajan L. Relativistic configuration interaction calculations on the $K\alpha$ X-ray satellites of argon / L. Natarajan // *Journal of Physics B*, –2003. – т. 36–№ 1– P. 105–118.
99. Couch R. Relativistic calculations of $K\alpha$ satellite properties for medium-Z elements / R. Couch, L. Scott Bruce, // *Physical Review A*–1991. – т. 44– № 5 – P. 3016–3022.

100. Kuhn W.J. $K\alpha$ satellite transition assignments for medium-Z elements / W.J. Kuhn, B.L. Scott // *Physical Review A*–1986. – т. 34–№ 4– P. 1125–1130.
101. Боровой Н. А. Аномальная интенсивность рентгеновских $K\alpha_{3,4}$ –сателлитов $3p$ – элементов при околопороговом возбуждении / Н. А. Боровой, В. Шияновский, // *Украинский физический журнал*– 1986. – т. 31– № 3– P. 401–403.
102. Боровой Н.А. Особенности рентгеновской $KL_{2,3}$ –эмиссии атомов хрома при околопороговом возбуждении электронным ударом / Н.А Боровой, В.В. Иванов, В.И. Шияновский // *Оптика и спектроскопия*–1999. – т. 86– № 1– P. 16 – 19.
103. Safronova U.I. the effect of configuration mixing on the radiation spectrum structure of multicharged ions / U.I. Safronova, V.S. Senashenko // *Physica Scripta*–1982. –т. 25– № 1–, P. 37–44.
104. Langenberg A. Study of Mg $K\alpha$ X-ray multiplet structure observed in ion-atom collisions / A.Langenberg, R. L. Watson / *Physical Review A*–1981. –т. 23, № 3– P. 1177–1187.
105. Боровой Н.А. Рентгеновский спектр ионизированных атомов кремния при электронном ударе / Н.А. Боровой, И.В.Гулевич, В.Ф. Суржко, В.И. Шияновский // *Оптика и спектроскопия*–1990. –т. 69– № 5–, P. 1090 – 1093.
106. Боровой Н.А. Особенности трехэлектронной - ионизации атомов кремния при фотопоглощении вблизи порога / Н.А. Боровой // *Оптика и спектроскопия*–2004. –т. 97– № 3– P. 353 – 363.
107. Feinberg E.L. Ionization of the atom due to β –decay / E.L. Feinberg // *Journal of Physics – USSR*–1941. – т. 4–№ 5–P. 423–438.
108. Migdal A.B. Ionizations of atoms accompanying α – and β – decay / Migdal A.B. // *Journal of Physics – USSR*–1941. –т. 4– № 5– P. 449–453.
109. Carlson T. A. Calculation of Electron Shake–Off for Elements from $Z=2$ to 92 with the Use of Self-Consistent-Field Wave Functions / T. A. Carlson, C. W. Nestor, Jr. at al // *Physical Review*–1968. –т. 169–№ 1–P. 27–36.
110. Carlson T. A. Calculation of Electron Shake–Off Probabilities as the Result of X-Ray Photoionization of the Rare Gases Functions / T. A.Carlson, C. W.Nestor, Jr // *Physical Review A*–1973. –т. 8– № 6– P. 2887–2894.

111. Mukoyama T. Atomic excitation as the result of inner-shell vacancy production / T. Mukoyama, K. Taniguchi // *Physical Review A*–1987. –т. 36– № 2– P. 693–698.
112. Mukoyama T. Taniguchi Atomic excitation and ionization as the result of inner-shell vacancy creation / T. Mukoyama Y. K. Ito // *X-Ray Spectrometry*–1999. –т. 28– № 6 –P. 491–496.
113. Kochur A.G. Shake process probabilities for outer-shell electrons in atoms with $Z \leq 71$, / A.G. Kochur, A.I. Dudenko, D. Petrini, A.G. Kochur // *Journal of Physics B*–2002. –т. 35–, № 2– P. 395–399.
114. Хоперский А.Н. Эффект монопольной перестройки электронных оболочек при упругом рассеянии фотона на атоме / А.Н. Хоперский, В.А. Явна, В.Ф. Демехин // *Оптика и Спектроскопия*–1994. –т. 77– № 6– P. 880–881.
115. Хоперский А.Н. Резонансное неупругое рассеяние фотона атомом неона в области K– и KL_{2,3}– порогов ионизации / А.Н. Хоперский, А.М. Надолинский, Р.В. Конев, и др. // *Оптика и спектроскопия*–2006. –т. 100–№ 4– P. 562.
116. Боровой Н.А. Группа сателлитов Sc при различных условиях возбуждения / Н.А Боровой., А.С. Ернязов, В.Ф.Суржко, В.И. Шияновский, // *Украинский физический журнал*–1992. –т. 37–№ 10– P. 1563 – 1567.
117. Lin C. D. Channel interaction and threshold behavior of photoionization / C. D. Lin // *Physical Review A*1974. –т. 9– № 1–P. 171–180.
118. Starace A.F. Photoionization of Argon and Xenon Including Final-State Correlation / A.F. Starace // *Physical Review A*–1970. –т. 2–№ 1– P. 118–121.
119. Chattarji D. Electron shake-off in neon and the interaction of continuum states / D. Chattarji, W. Mehlhorn, V. Schmidt // *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*–1978. –т. 13– № 2– P. 97–106.
120. Боровий М.О. Вплив типу ту енергії іонізуючої частинки на інтенсивність рентгенівської KL_{2,3}–емісії атомів кремнію / М.О.Боровий, В.В. Іванов, В.Ф. Суржко, В.І. Шияновський, // *Український фізичний журнал*–2001. –т. 46–№ 1– P. 70 – 72.

121. Боровой Н. А. Влияние зарядового состояния атома серы на интенсивность $K\alpha$ - сателлитов / Н. А. Боровой, А. З. Жмудский, В. Ф. Суржко, и др. // Украинский физический журнал–1985.–т. 30–№ 11– Р. 1701–1703.
122. Боровой Н. А. Изучение механизма влияния ближайшего окружения излучающего атома на интенсивность $K\alpha$ - сателлитов кремния / Н. А.Боровой, А. С. Ернязов, А. З.Жмудский, и др // Оптика и спектроскопия–1985. –т. 59– № 6–Р. 1324 –1326.
123. Боровий М.О. Рентгенівські емісійні $KL_{2,3}$ - спектри атомів кремнію, фосфору та титану з різними ефективними зарядами / М.О.Боровий, В.Ф. Суржко, В.І. Шияновський, // Вісник Київського університету, Серія фізико-математичні науки–2000. –№ 7–Р. 423 – 428.
124. Shchagin A. V. Possibilities for measurement of nano-crystallites size with use of parametric X-ray radiation / A. V. Shchagin // J. Phys.: Conf. Ser. –2010. – № 236. 012020– Р. 9.
125. Baryshevsky V. G. Parametric X-ray radiation in crystals. Theory, experiment and applications / Baryshevsky V. G., Feranchuk I. D., Ulyanenko A. P. // Springer Tracts in Modern Phys–2005. –№ 213–Р. 183.
126. Субботин Г. Г. Квазинакопительный режим работы синхротрона «Пахра» / Г. Г. Субботин, А. В. Серов, // Препринт ФИАН–2007. – № 18– Р. 18.
127. XR-100SDD silicon drift detector (SDD), AMPTEK.COM: Official site Amptek. URL: <http://www.amptek.com/products/xr-100sdd-silicon-drift-detector>, –03.03.2018. –
128. XR-100CR Si-PIN X-ray detector, AMPTEK.COM: Official site Amptek. URL: <http://www.amptek.com/products/xr-100cr-si-pin-x-ray-detector>, –03.03.2018.
129. X-123SDD complete X-ray spectrometer with silicon drift detector (SDD), AMPTEK.COM: Official site Amptek. URL: <http://www.amptek.com/products/x-123sdd-complete-x-ray-spectrometer-with-silicon-drift-detector-sdd>, –03.03.2018.
130. Available from: <http://danp.sinp.msu.ru/EM-PDF/EM12.pdf>, «Лекция 12,» Спектрометрия в ПЭМ [Internet], –2014 [cited 2014 07/22].

131. Алексеев В.И. Система диагностики выведенного электронного пучка на ускорителе "Пахра" / В.И.Алексеев, В.А.Карпов, А.А.Ким, С.В.Мишин, В.И. Сергиенко, В.А. Хабло // Москва: ФИАН, p. Report nr 13, –2000. –
132. Kasarova S.N. Analysis of the dispersion of optical plastic materials / Kasarova S.N., Sultanova N.G., Ivanov C.D., Nikolov I.D. // Optical Materials–2007. –т. 7–№ 29(11) – P. 481–90.
133. Safronova U.I. On the effect of configuration mixing on the radiation spectrum structure of multicharged ions / Safronova U.I., Senashenko V. S. // Physica Scripta–1982. –т. 25– № 1– P. 37–44.
134. Larkins F.P. Semiempirical aauger- electron energies for elements 10Z100 / F.P. Larkins // Atomic Data and Nuclear Data Tables–1977. –т. 20– № 4–P. 311–387.
135. Knulst W. / W. Knulst, M. van der Wiel, O. Luiten, and J. Verhoeven // Appl. Phys. Lett–2003. –т. 83 –P. 4050.
136. Knulst W. Cherenkov Radiation in the Soft X-ray Region: Toward a Compact Narrow-Band Source / W. Knulst // Ph. D. Thesis. Eindhoven –2004.
137. Zhevago N.K. / N.K. Zhevago and V.I. Glebov // Phys. Lett. A–1991. –№ 160– P. 564.
138. Gary C. / C.Gary, V. Kaplin, A Kubankin., N.Nasonov, M Piestrup., S.Uglov // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B–2005. –т. 227–P. 95.
139. Henke B., Gullikson E., and Davis J., At. Data Nucl. Data Tables, [http://www-cxro. lbl.gov](http://www-cxro.lbl.gov) –1993. – т. 54, P. 181.
140. Garibian G. X-ray Transition Radiatio. / G.Garibian, C.Yang // Erevan: Armenian Academy of Science–1983.
141. Забоев В. Н. Обзор исследований рентгеновского переходного излучения электронов с энергией 300–900 МэВ в периодических многослойных радиаторах / В. Н.Забоев, В. В.Каплин, С. И. Кузнецов, С. Р.Углов // физика элементарных частиц и атомного ядра–2014. –т. 45–№ 2.
142. Свешников А. Г. Теория функций комплексной переменной / А. Г Свешников., А. Н. Тихонов // М.: Наука, Физматлит–1999. – № 5-е изд– P. 319.

143. Alekseev V.I. X-ray studies of the distribution function of crystalline grains over orientation angles in mosaic crystals / V.I. Alekseev, P.N. Zhukova // *Nuovo Cimento*–2011. –т. 34– № 4– P. 349 – 357.
144. Gostishchev V. I. Features of the transition radiation generated by weakly-relativistic electrons in the regime of grazing escape from a flat target / V. I. Gostishchev, A. S. Kubankin // *Technical Physics Letters*– 2008. –т. 34, № 11, P. 927 – 929.
145. Alekseev V. I. Measuring coherent peaks of polarization bremsstrahlung from relativistic electrons in polycrystalline targets in backscattering geometry / V. I. Alekseev, K. A. Vokhmyanina // *Technical Physics Letters*–2012. – т. 38–, № 3– P. 294 – 296.
146. Astapenko V. A. Measurement of the polarization bremsstrahlung of relativistic electrons in polycrystalline targets / V. A. Astapenko, A.S. Kubankin, // *JETP Letters*–2006. –т. 84–№ 6– P. 281 – 284.
147. Иверонова В. И. Теория рассеяния рентгеновских лучей./ В. И. Иверонова, Г.П. Ревкевич // М: Издательство Московского университета– 1978. –Р. 277.
148. Миркин Л.И. Справочник по рентгеноструктурному анализу / Л.И. Миркин // М.: ГИФМЛ–1961. – Р. 863.
149. Кубанкин А. С. О возможности использования параметрического рентгеновского излучения для исследования анизотропии мозаичности кристаллов / А. С. Кубанкин, Н. Н Насонов // *Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исслед*–2008. –№ 4–Р. 76–79.
150. Немошкаленко В.В. Рентгеновские эмиссионные спектры металлов и сплавов / В.В. Немошкаленко // Киев: Наук, думка–1972. –Р. 318.
151. Mandić L. / L. Mandić, S.Fazinić, and M. Jakšić // *Phys. Rev. A*–2009. –т. 042519–№ 80.
152. Han / Han, L. Demir // *Phys. Rev. A*–2010. – № 82: 042514.
153. Pérez P. D. / P. D. Pérez, A. C. Carreras, J. C. Trincavell // *J. Phys. B*–2012. – т. 45– № 2: 025004.

154. Боровий М.А. Біляпорогова кратна іонізація внутрішніх електронних оболонок атомів кремнію та 3d-, 5d-металів / М.А. Боровий // Автореферат дисертації на здобуття вченого ступеню доктора фіз.-мат. наук. Київ, –2011.
155. Whiting E.E. An empirical approximation to the Voigt profile / Whiting E.E. // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer–1968. –т. 8, № 6 – P. 1379 – 1384.
156. Schreier F. The Voigt and complex error function: A comparison of computational methods / F. Schreier // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer–1992. – т. 48– № 5–6 – P. 743 – 762.
157. Levenberg K. A. Method of the solution of certain non-linear problems in least squares / K. A. Levenberg // The Quarterly of Applied Mathematics–1944. – № 2– P. 164 – 168.
158. Marguardt D. An algorithm for least squares estimation of non-linear parameter / D. Marguardt // Journal on Applied Mathematics–1963. – № 11 – P. 431 – 441.
159. Mark C. Smart, Resolving surface chemical states in XPS analysis of first row transition metals, oxides and hydroxides: Sc, Ti, V, Cu and Zn / C. Mark Biesinger, Leo W.M. Lau, Andrea R Gerson, St.C. Roger // Surface Science Western, The University of Western Ontario, The University of Western Ontario Research Park, Room LL31, 999 Collip Ci Applied Surface Science 257–2010. – P. 887–898.
160. Mark C. Resolving surface chemical states in XPS analysis of first row transition metals, oxides and hydroxides: Cr, Mn, Fe, Co and Ni / C. Mark Biesinger, Brad P. Payne, Andrew P. Grosvenor, Leo W.M. Lau, Andrea R. Gerson, St.C. Roger // Applied Surface Science 257–2011. –P. 2717–2730.
161. Боровой Н.А. Исследование флуоресцентных рентгеновских спектров 3р – элементов при различных условиях возбуждения / Н.А. Боровой // автореф. дисс. на соискание научн. степени канд. физ.-мат. наук: спец. 01.04.07 "Физика твердого тела" Киев–1986. – P. 20.
162. Собельман Н.Н. Введение в теорию атомных спектров / Н.Н. Собельман // М.: ГИФМЛ–1963. –P. 640.

163. Боровий М. О. Кореляційні ефекти у рентгенівських емісійних спектрах KL2 та KL3 –іонізованих атомів кремнію / Боровий М. О., Іванов В.В., Суржко В. Ф., Шияновський В. І., // Український фізичний журнал. – 2001. – т. 46– № 3–Р. 285 – 288.
164. Chen M.H. / M.H.Chen, B.Crasemann // Atom. Data Nucl. Data Tabl.–1979. –т. 8–№ 13.
165. Krause M.O. J. Phys. Chem. Ref. Data / M.O.Krause, J.H.Oliver //–1979. – т. 8– № 2: 329.
166. Krause M.O, J. Phys. Chem. Ref. Data / M.O.Krause, J.H.Oliver //–1979. – т. 8– № 2: 307.