

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ МЕТАЛОФІЗИКИ ІМ. Г.В. КУРДЮМОВА**

Аль-Омарі Мохаммад Абдулла Мохаммад



УДК 537.531; 537.572

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

01.04.07 – фізика твердого тіла

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Київ – 2018

Дисертацією є рукопис.

Роботу виконано на кафедрі загальної фізики фізичного факультету Київського національного університету імені Тараса Шевченка МОН України, м. Київ

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук, професор,
Боровий Микола Олександрович,
завідувач кафедри загальної фізики,
Київський національний університет
імені Тараса Шевченка.

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор,
Зауличний Ярослав Васильович,
завідувач кафедри металознавства та термічної обробки,
Національний технічний університет України «Київський
політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського»;

доктор фізико-математичних наук,
Лізунов Вячеслав Вячеславович,
завідувач відділу фізики багатопараметричної
структурної діагностики,
Інститут металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України.

Захист відбудеться «26» грудня 2018 р. о 14:00 на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 26.168.02 при Інституті металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України за адресою: бульвар Академіка Вернадського, 36, 03142 Київ, Україна.

З дисертацією можна ознайомитись в бібліотеці Інституту металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України за адресою: бульвар Академіка Вернадського, 36, 03142 Київ, Україна.

Автореферат розіслано «24» листопада 2018 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради Д 26.168.02
доктор фізико-математичних наук, професор



Є. Г. Ленъ

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

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 кеВ 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 МеВ) 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 МеВ) 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 1,6–2,9 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 ежектованого $2p$ 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 кеВ), 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 кеВ, 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.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність теми дисертації, сформульовано мету і задачі дослідження, об'єкт, предмет і методи дослідження, визначено наукову новизну і практичне значення отриманих результатів, відображено особистий внесок автора, наведено відомості щодо апробації результатів роботи та публікацій, в яких висвітлено основні результати роботи.

У першому розділі дисертації розглянуто існуючі літературні дані щодо процесів взаємодії високоенергетичних електронів з кристалами, а саме, генерації та дифракції ПРВ, а також іонізації внутрішніх електронних оболонок атомів, яка супроводжується генерацією двовакансійних ($1s^{-1}2p^{-1}$), тривакансійних ($1s^{-1}2p^{-2}$) та чотиривакансійних ($1s^{-1}2p^{-3}$) станів. Виконано аналіз механізмів генерації ПРВ та розглянуто загальні властивості параметричного рентгенівського випромінення у кристалах, зокрема, характер спектрально-кутового розподілу ПРВ залежно від енергії електронів пучка, кристалічної структури мішені та геометрії спостереження дифрагованого параметричного випромінення. Наведено відомі результати експериментальних досліджень спектральних параметрів ПРВ у моно- та полікристалах різної природи і структурної досконалості та вказано на суперечливий характер таких даних. Показано, що іншим аспектом процесу розповсюдження високоенергетичних електронів у кристалах є кратна $1s^{-1}2p^{-n}$ ($n=1-3$) іонізація атомів мішені, при якій утворення первинної вакансії у $1s$

оболонці супроводжується викидом від одного до трьох $2p$ електронів за *shake-off* механізмом. Розглянуто характеристики рентгенівських $K\alpha L^1$ та $K\alpha L^2$ спектрів, які випромінюються при радіаційних переходах $1s^{-1}2p^{-1} - 2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-2} - 2p^{-3}$ й вказано на чутливість їх спектральних параметрів до характеру хімічного зв'язку атома, який випромінює, з атомами найближчого оточення. Відзначено суттєву роль електронних кореляцій при $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації та показано, що у кристалах процеси екранування взаємодії ежектованих електронів з іонізованим атомом залишаються нез'ясованими. На основі аналізу літературних даних сформульовані завдання дисертаційного дослідження.

У **другому розділі** викладено методи експериментальних досліджень спектрів ПРВ на базі експериментальної установки «Рентген 1» при розповсюдженні в твердому тілі електронів з енергією 7 MeV та рентгенівських емісійних $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$ спектрів елементів $13 \leq Z \leq 24$ при бомбардуванні відповідних речовин електронами з енергіями 4,5–100 кеВ. Дослідження спектрів ПРВ виконувалися на експериментальному комплексі "Рентген 1", у якому електрони до енергії 7 MeV прискорювалися за допомогою мікротрону. Гоніометрична схема установки забезпечувала реєстрацію ПРВ у діапазоні кутів спостереження $0^\circ - 180^\circ$ відносно напрямку поширення електронного пучка. Використання системи магнітного керування електронним пучком суттєво знизило радіаційний фон у каналах реєстрації, що дозволило виконувати достовірну реєстрацію спектрів ПРВ при відповідному виборі часу накопичення сигналів ПРВ. При дослідженні рентгенівських емісійних $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$ спектрів електрони прискорювалися у діапазоні енергій 4,5–100 кеВ з використанням електронної гармати приладу ЕММА-2, а рентгенівські емісійні спектри реєструвалися за допомогою брегівського спектрометра з фокусуванням за Іоганном при відбиванні від площин $(10\bar{1}0)$, $(11\bar{2}0)$ монокристалів кварцу. Роздільна здатність спектрометра забезпечувала не тільки поділ $K\alpha$ спектру на групи ліній $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$, але й дозволяла виділяти окремі компоненти у межах кожної спектральної групи.

Третій розділ дисертаційної роботи присвячений дослідженню спектрально-кутових характеристик ПРВ при розповсюдженні високоенергетичних релятивістських електронів у кристалах. Зокрема, теоретично розглянуто генерацію ПРВ при русі релятивістських електронів у тонкому шарі кристалу при зменшенні кута ковзання та з'ясовано характер зміни конусу ПРВ, що генерується у цьому шарі

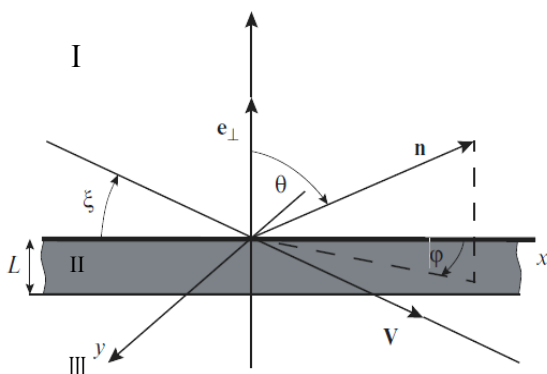


Рис. 1. Схема руху електрона та виходу ПРВ.

(на відміну від робіт [1,2], які обмежилися розглядом ковзаючого руху електрона у напівнескінченному середовищі). На рисунку 1 представлено шар кристалу товщиною L , на який потрапляє електрон з швидкістю V під кутом ковзання ξ . Було обчислено поляризаційні компоненти амплітуди ПРВ $\vec{A} = \vec{e}_1 A_{1,\omega} + \vec{e}_2 A_{2,\omega}$, які відповідають геометрії руху електрона, що наведена на рис. 1, а саме:

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

$$A_{2,\omega} = \frac{e}{\pi V_{\perp}} \frac{e_2 V}{\sqrt{n_{\parallel}^2 + p^2}} \frac{\chi n_{\perp}}{(p^2 - n_{\perp}^2)(p^2 - \beta^2)} \times \frac{(\beta(n_{\parallel}^2 + p^2) - \varepsilon p)(\varepsilon n - \beta)(1 - e^{i\Omega_+}) + (\beta(n_{\parallel}^2 + p^2) + \varepsilon p)(\varepsilon n + \beta)(1 - e^{i\Omega_-})}{(\beta - n_{\perp})^2 e^{i\Omega_+} - (\beta + n_{\perp})^2 e^{i\Omega_-}},$$

де $\Omega_{\pm} = \frac{\omega L}{V_{\perp}} (1 - \vec{n}_{\parallel} \vec{V} \pm V_{\perp} \sqrt{n_{\perp}^2 + \chi(\omega)})$, $\beta = \sqrt{n_{\perp}^2 + \chi(\omega)}$, $p = \frac{1 - \vec{n}_{\parallel} \vec{V}}{V_{\perp}}$, $\chi(\omega)$ — діелектрична сприйнятливість речовини. За цими даними визначався спектрально-кутовий розподіл ПРВ $\frac{d^2 N}{d\omega d\Omega} = |A_{1,\omega}|^2 + |A_{2,\omega}|^2$. Отримано вирази, які визначають кутове положення максимумів ПРВ. Зокрема, в області I простору (рис. 1) кути максимумів (θ^{\pm}), що відповідають боковій поверхні конусу ПРВ, дорівнюють:

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

де $\varepsilon(\omega) = 1 + \chi(\omega)$. З рівняння (1) випливає, що при релятивістських швидкостях електрона кути θ^{\pm} визначаються другим доданком і тоді зменшення кута ξ супроводжується зменшенням $\cos(\theta^{\pm})$, отже, збільшенням кутів θ^{\pm} . Як видно з рис. 1, зростання кута θ^{\pm} відповідає зменшенню кута розхилу конусу ПРВ $\phi^{\pm} = \xi - \theta^{\pm} + \pi/2$. Таким чином, при русі електрона у шарі речовини має спостерігатися зменшення кута розхилу конусу ПРВ при зменшенні кута ковзання електрона по відношенні до площини поверхні. Отриманий результат вказує 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 [1,2]. Крім того, використання тонкої мішені принципово дозволяє використовувати трансформований (звужений) конус ПРВ як при влітанні у речовину, так і при вильоті. Для цього достатньо використовувати тонкі мішені товщиною порядку 100 нм, нанесені на гладку підкладку. У таких мішенях буде здійснюватися як звуження конусу ПРВ, так і його дифракція на атомних площинах. Очевидно, при наявності підкладки експериментально може бути реалізованою реєстрація ПРВ тільки з боку вільної поверхні тонкого зразка, що відповідає дифракції конуса ПРВ при влітанні електронів.

Вперше у геометрії зворотної реєстрації експериментально досліджено спектри ПРВ, що генерується у монокристалічному кремнії і високоорієнтованому піролітичному графіті (ВОПГ) при розповсюдженні електронів з енергією 7 MeV. Встановлено, що при нормальному падінні пучка електронів на фізичну поверхню (110) Si спектри ПРВ містять максимуми (220), (440) і (660), а при нормальному падінні на фізичну поверхню (001) ВОПГ — максимуми (002), (004), (006) і (008), енергії яких з точністю до 0,5% збігаються зі значеннями, визначеними в кінематичному наближенні (рис. 2 та рис. 3). Визначено орієнтаційні залежності максимумів ПРВ для зразків Si та ВОПГ. Зокрема, досліджувалися залежності

інтенсивності максимумів (220) Si та (002) ВОПГ від кута відхилення площини зразка відносно нульового положення (при якому реєструвалися повні спектри рис. 2 та рис. 3) Використовувалися два типи кутових відхилень. Перший тип — обертання зразка на кут φ навколо вертикальної осі гоніометра, яке забезпечує поворот площини зразка в горизонтальній площині гоніометра. Кут φ змінювався від нуля до $\varphi = \pm 10^\circ$. Другий тип — обертання зразка на кут χ навколо вісі, що лежить в горизонтальній площині гоніометра і перпендикулярна до напрямку

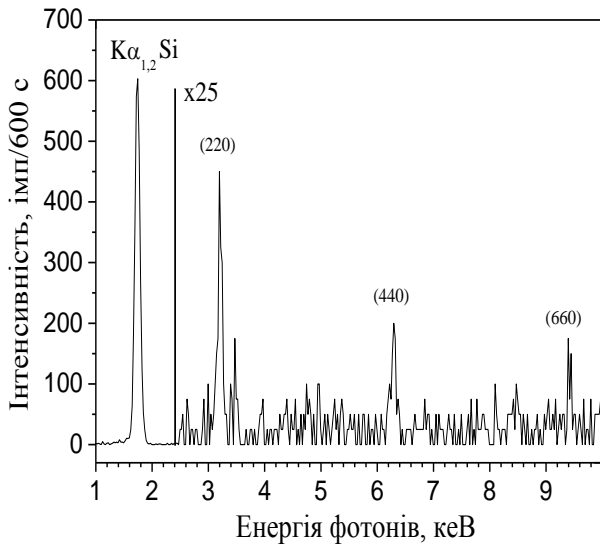


Рис. 2. Спектр ПРВ кремнію при зворотній реєстрації.

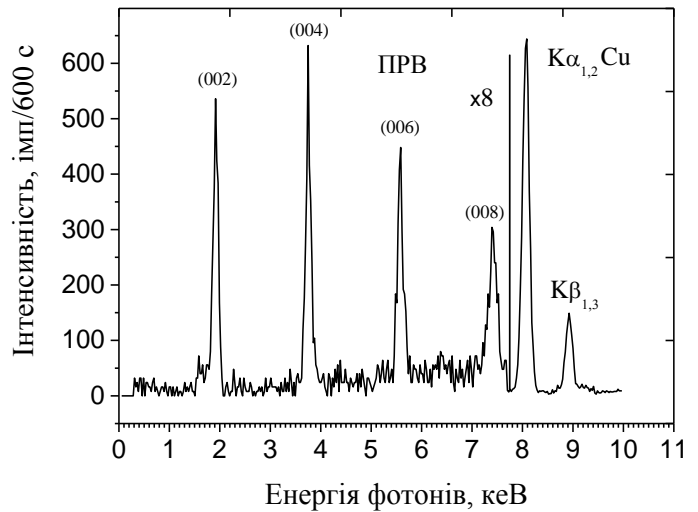


Рис. 3. Спектр ПРВ ВОПГ при зворотній реєстрації.

електронного пучка. Таке обертання забезпечує поворот площини зразка у вертикальній площині гоніометра. Кут також змінювався від нуля до $\chi = \pm 10^\circ$. Типові орієнтаційні залежності представлено на рис. 4–7. Як видно, спостерігаються два симетричних максимуми, що відображають переріз конусу ПРВ. При наближенні до центру розподілу ($\varphi, \chi \rightarrow 0$) інтенсивність не спадає до нуля, як це передбачається у кінематичному наближенні, що зумовлено як багатократним розсіюванням ПРВ, так і обмеженістю кутового розділення гоніометру. У випадку Si відстань між максимумами складає $5,0^\circ \pm 0,3^\circ$, а для ВОПГ — $6,3^\circ \pm 0,3^\circ$, що помітно менше за очікувану у кінематичному наближенні кутову ширину конусу ПРВ $2\phi = (\gamma^{-2} + \chi_0)^{-1/2} = 7,8^\circ$ де $\gamma = (1 - V^2 / c^2)^{-1/2}$, χ_0 — діелектрична сприйнятливість середовища.

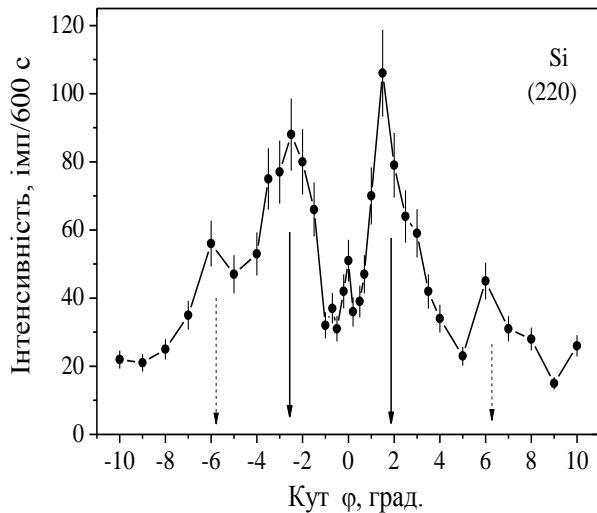


Рис. 4. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (220) Si при обертанні на кут φ .

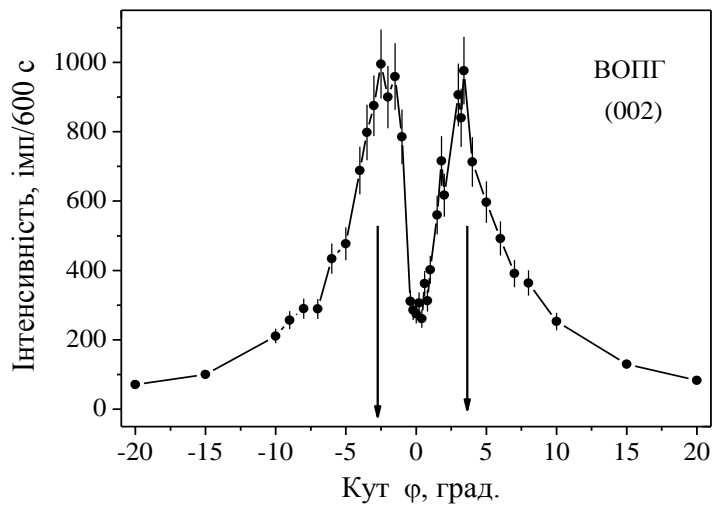


Рис. 5. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (002) ВОПГ при обертанні на кут φ .

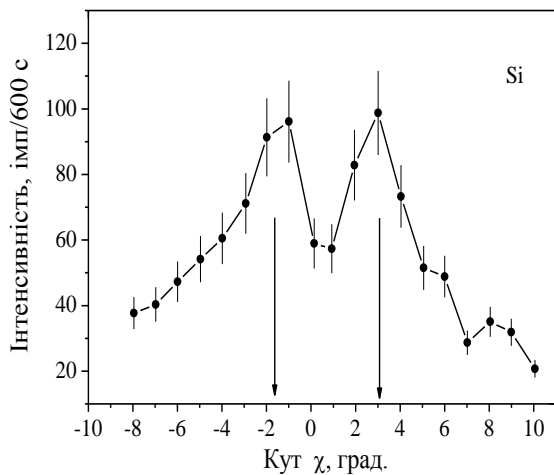


Рис. 6. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (220) Si при обертанні на кут χ .

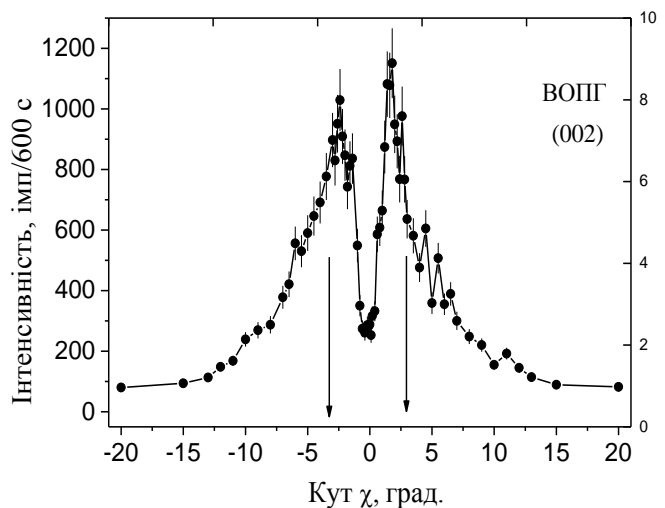


Рис. 7. Кутова орієнтаційна залежність інтенсивності максимуму (002) ВОПГ при обертанні на кут χ .

Частина виявлених розбіжностей між експериментальними та розрахованими у кінематичному наближенні значеннями кутового розвору конусу ПРВ може бути зумовлена неточностями юстування зразків у гоніометрі. Однак, їх основна частина визначається ефектами динамічної дифракції, які проявляються при зростанні структурної досконалості кристалів. А саме, динамічні ефекти максимальні у більш структурно досконалому кремнії, у якому звуження конусу відносно значення у кінематичному наближенні складає $2,8^\circ$, тоді як для зразків ВОПГ з кутом мозаїчності $0,4^\circ$ таке звуження є меншим і складає $1,5^\circ$.

Вперше експериментально досліджено вплив розмірів кристалітів у порошкових зразках на відносну інтенсивність максимумів ПРВ. В якості зразків було використано порошки алмазу 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. Реєструвалися максимуми ПРВ при відбиванні від площин (111) і (220) алмазу під кутом спостереження $\theta = 151^\circ$

відносно напрямку первинного пучка. Визначені відношення інтегральних інтенсивностей максимумів $N(111)/N(220)$ та їх ширин порівнювалися з параметрами цих максимумів на тих же брегівських кутах, але отриманих при дифракції рентгенівського випромінення трубки (ДРВТ) Oxford Apogee 5000 W. Типові спектри ПРВ та ДРВТ наведено на рис. 8.

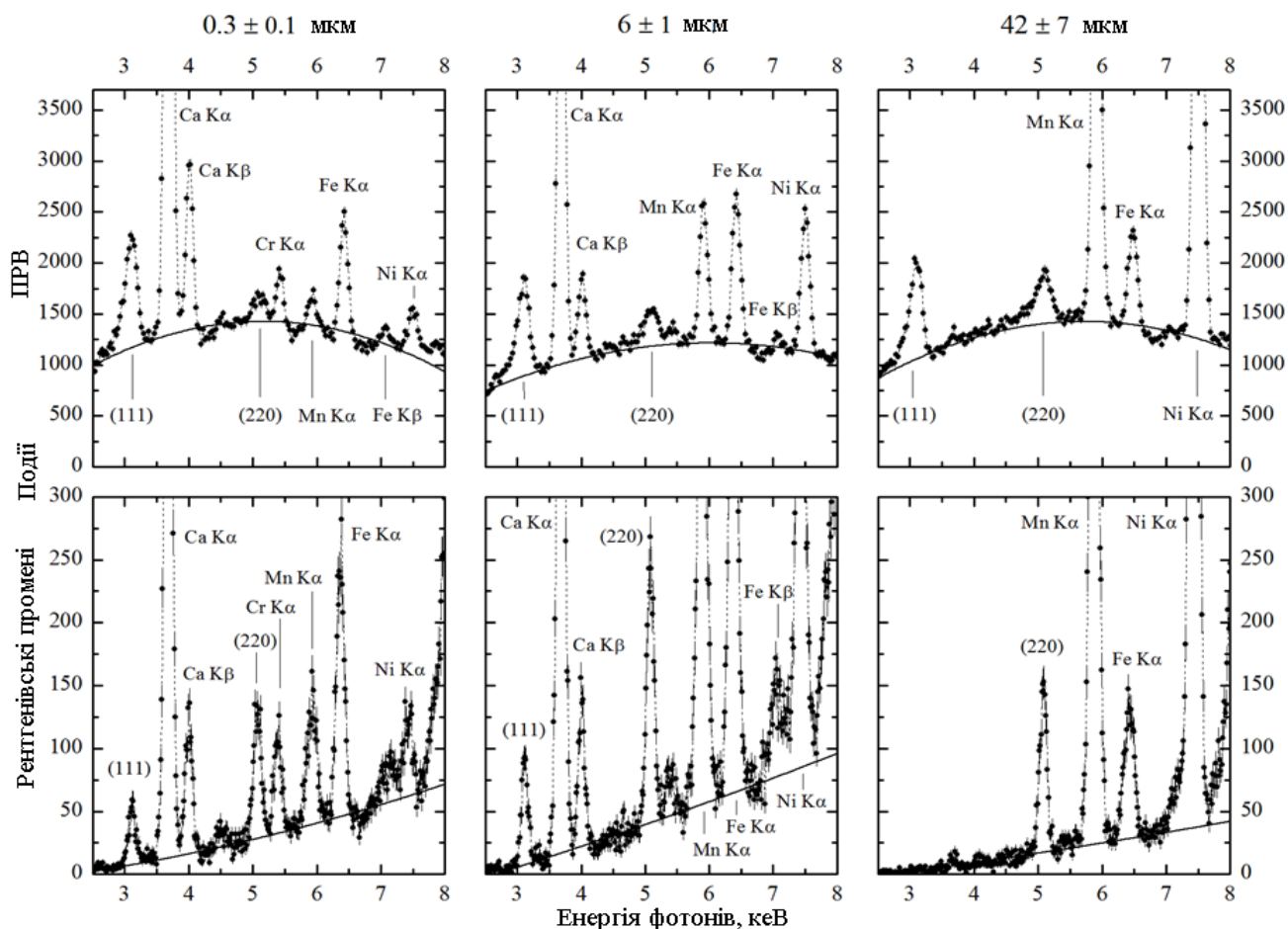


Рис. 8. Спектри ПРВ та ДРВТ на порошкових зразках алмазу з різними середніми розмірами мікрокристалів.

На рис. 9 представлено отримані значення відношень інтегральних інтенсивностей $N(111)/N(220)$ ПРВ та ДРВТ для усіх зразків. Виявлено, що при зростанні розмірів кристалітів відношення $N(111)/N(220)$ ПРВ зменшується більш ніж у 2 рази, тоді як таке відношення для ДРВТ залишається без змін. Найбільша чутливість величини $N(111)/N(220)$ до розмірів кристалітів проявляється в області $d = 0,3\text{--}6,0$ мкм і складає 1,9 рази, а при подальшому зростанні розмірів ефект стає менш помітним. Встановлено, що ширини максимумів (111) і (220) у випадку дифракції ПРВ для зразків з різними розмірами кристалітів залишаються сталими, тоді як ширини цих максимумів у випадку ДРВТ при зменшенні розмірів зерен зростають у відповідності з рівнянням Шеррера. Необхідно відзначити, що відомі у літературі моделі опису спектрально-кутового розподілу інтенсивності ПРВ при розповсюдженні електронного пучка у полікристалах у кінематичному наближенні не враховують параметрів, які б визначали залежність такого розподілу від розмірів

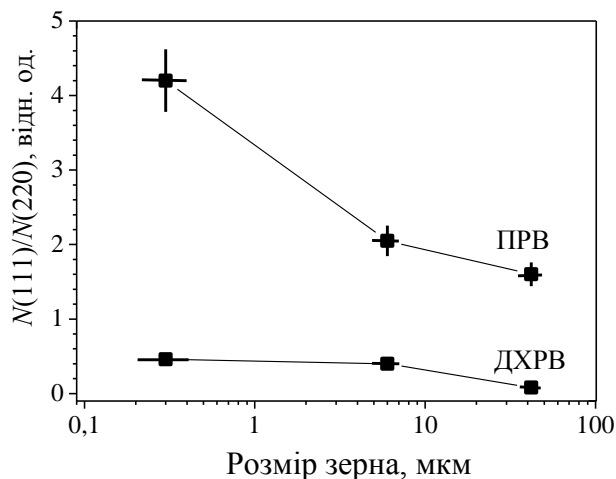


Рис. 9. Залежність відносної інтенсивності максимумів ПРВ та ДРВТ від розмірів зерен алмазу.

здатності ПРВ для площин (111) та (220). Таким чином, експериментально встановлено, що при проходженні пучка високоенергетичних електронів у полікристалах відношення інтегральних інтенсивностей максимумів ПРВ виявляє чутливість до розмірів блоків когерентного розсіювання. Така чутливість може бути покладена в основу нового методу оцінки розмірів мікро- та наночастинок. Це важливо, зважаючи на той факт, що генерація ПРВ відбувається практично в усьому об'ємі зразка, на відміну від ДРВТ, для якого товщина шару дифракції обмежується екстинкційною довжиною.

У **четвертому розділі** представлено результати дослідження рентгенівських емісійних спектрів $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$ у металах Ti, V, Cr та їх оксидах при збудженні електронами з енергією 25 кеВ, а також $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$, $K\alpha L^3$ спектрів Al при бомбардуванні електронами з енергіями 4,5–100 кеВ. Оскільки група $K\alpha L^1$ ліній (одноелектронні переходи $1s^{-1}2p^{-1} - 2p^{-2}$) містить окремі компоненти $a-h$, які відповідають радіаційному розпаду станів 1P_1 та $^3P_{0,1,2}$ термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації (табл. 1, стовп. 1), то відношення інтенсивностей груп ліній, яким відповідають початкові стани 1P_1 та $^3P_{0,1,2}$ термів, експериментально визначалося як відношення інтегральних інтенсивностей компонентів:

$$\chi = \frac{I(^3P)}{I(^1P)} = \frac{I(b) + I(f) + I(d) + I(c) + I(g) + I(h)}{I(a) + I(e)}. \quad (2)$$

Відносна інтенсивність χ була визначена для атомів Ti, V, Cr у металах та оксидах TiO_2 (рутил), V_2O_3 , VO_2 , V_2O_5 , Cr_2O_3 . При поділі на компоненти $a-h$, кожен з них апроксимувався амплітудною функцією Фойгта. При цьому варіювалися пікові інтенсивності та енергії, а гауссова і лоренцева напівширини підтримувалися постійними і однаковими для всіх компонентів. У табл. 1 наведено відносні

кристалітів [3]. Тому залежність $N(111)/N(220)$ від розмірів кристалітів може бути зумовлена динамічними ефектами у дифракції ПРВ, зокрема, ефектом первинної екстинкції на блоках когерентного розсіювання з різною кількістю площин. Тоді відношення інтегральних інтенсивностей максимумів (111) і (220) можна записати як [4] $N(111)/N(220) = K \text{th}(mq_{(111)}) / \text{th}(mq_{(220)})$, де K — деяка стала; m — кількість атомних площин в межах блоку когерентного розсіювання, перпендикулярних до вектора розсіювання; $q_{(111)}$, $q_{(220)}$ — розсіюючі

інтенсивності окремих компонентів (відносно інтенсивності $K\alpha_{1,2}$ -ліній) та загальна відносна інтенсивність χ . На рис. 10 представлено типові $K\alpha L^1$ спектри V у металі та відповідних оксидах, а на рис. 11 — залежність величини χ від зсуву енергії $2p_{3/2}$ рівня в оксиді відносно його значення у металі.

Таблиця 1. Відносні інтенсивності компонентів $K\alpha L^1$

Відносна інтенсивність компонента, $10^{-2}\%$	Ti	TiO ₂	V	V ₂ O ₃	VO ₂	V ₂ O ₅	Cr	Cr ₂ O 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

Величина $2p_{3/2}$ -зсуву відображає ступінь локалізації заряду валентних електронів на атомі. Як видно з табл. 1 та рис. 11, при електронному бомбардуванні перехід від металів Ti, Cr до їх оксидів супроводжується зменшенням відносної

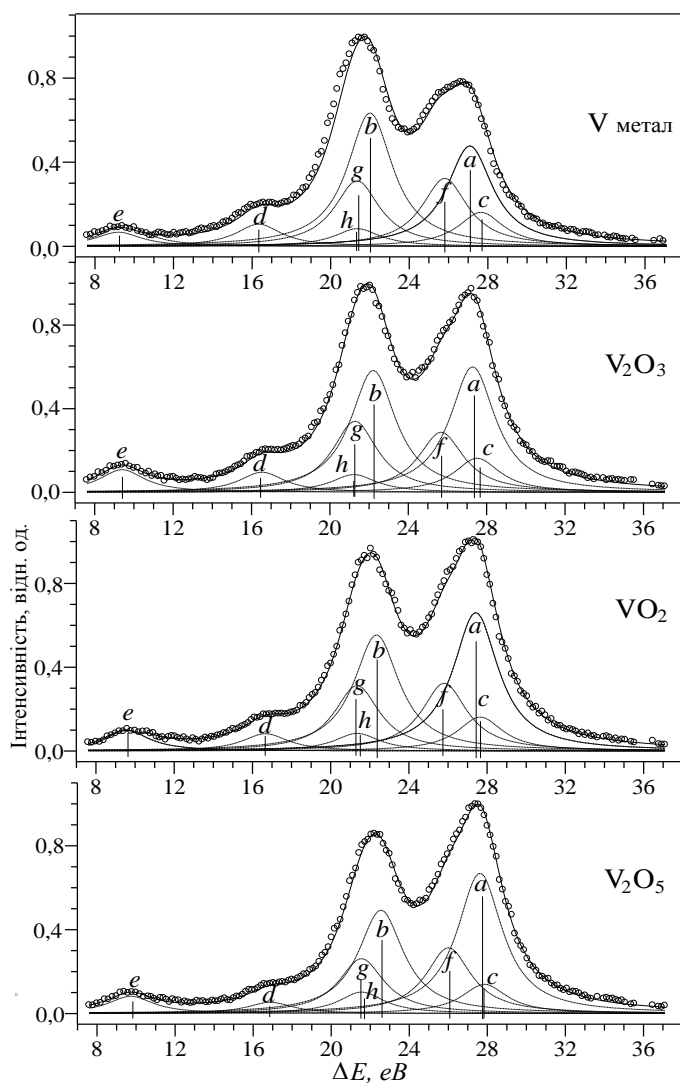


Рис. 10. $K\alpha L^1$ спектри V у металі та оксидах.

інтенсивності χ у 1,6–2,9 рази. В оксидах ванадію зростання ефективного позитивного заряду атому V, яке відображається зростанням енергії зв'язку V $2p_{3/2}$ електронів, супроводжується монотонним зменшенням відносної інтенсивності χ від 2,4 до 1,8.

Для пояснення впливу хімічного зв'язку на відношення перерізів збудження 1P та 3P термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації запропоновано модель, у якій: а) для кожного з континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$ хвильові функції будуються тільки через власні хвильові функції континуумів; б) вводиться ефективний радіус R_{eff} , тобто відстань ϵp електрона від центру атома, у межах якої у кристалі відбувається взаємодія такого електрона з $1s^{-1}2p^{-1}$ -іонізованим атомом. У металах $R_{eff} = 2-4 \text{ \AA}$ і зростає при локалізації заряду валентних електронів; в) враховується тільки міжканальна взаємодія континуумів, величина якої у кристалах визначається

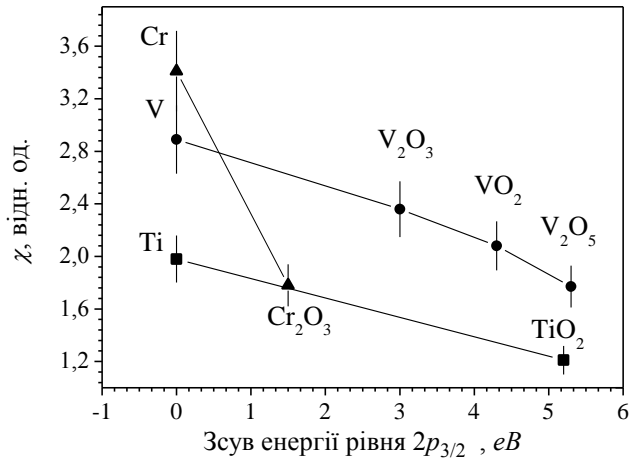


Рис. 11. Залежність відносної інтенсивності χ від величини зсуву енергії $2p_{3/2}$ електронів в оксиді відносно металу.

початкового стану атому з $1s^{-1}$ вакансією. Представлена модель є подальшим розвитком робіт [5,6], у яких врахування ступеню локалізації валентних електронів через введення ефективного радіусу взаємодії R_{eff} не виконувалося. Розрахунок за формулою (3) з використанням нерелятивістських воднеподібних екранованих радіальних хвильових функцій показав, що відношення $\sigma(^3P)/\sigma(^1P)$, отже, і відносна інтенсивність χ монотонно зменшуються у 1,5 рази при зростанні ефективного радіусу від $R_{eff} = 2 \text{ \AA}$ до $R_{eff} = 8 \text{ \AA}$ (перехід від металу до діелектрика). Отже, встановлено, 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} взаємодії $2p$ електрона у неперервному спектрі (ϵp електрона) з $1s^{-1}2p^{-1}$ іонізованим атомом. Сам ефективний радіус R_{eff} у кристалах залежить від ступеня локалізації валентних електронів у кристалах.

Для визначення ролі взаємодії $2p$ електронів, які залишають атом у результаті *shake-off* процесу, з $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізованими атомами було виконано експериментальне дослідження відносної інтенсивності $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів металу алюмінію при електронному бомбардуванні у діапазоні енергій електронів 4,5–100 кеВ. Типові $K\alpha_{1,2}$, $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектри Al наведено на рис. 12.

За відносними інтегральними інтенсивностями груп ліній $\nu = I(K\alpha L^1)/I(K\alpha_{1,2})$, $\eta = I(K\alpha L^2)/I(K\alpha L^1)$ та $\xi = I(K\alpha L^3)/I(K\alpha L^1)$ визначалися відносні імовірності утворення однієї додаткової $2p^{-1}$ вакансії (P_1), двох додаткових $2p^{-2}$ вакансій (P_2) та трьох додаткових $2p^{-3}$ вакансій (P_3) при утворенні первинної $2s^{-1}$ вакансії в акті іонізації атома високоенергетичним електроном.

мінімальною енергією $\epsilon(R_{eff})$. Тоді відношення перерізів збудження 1P та 3P термів $1s^{-1}2p^{-1}$ конфігурації може бути обчислено за формулою:

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

де $U_{\epsilon}(^3P)$, $U_{\epsilon}(^1P)$ — власні функції континуумів $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\epsilon p$ та $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\epsilon p$; $\psi(1s^{-1})$ — хвильова функція

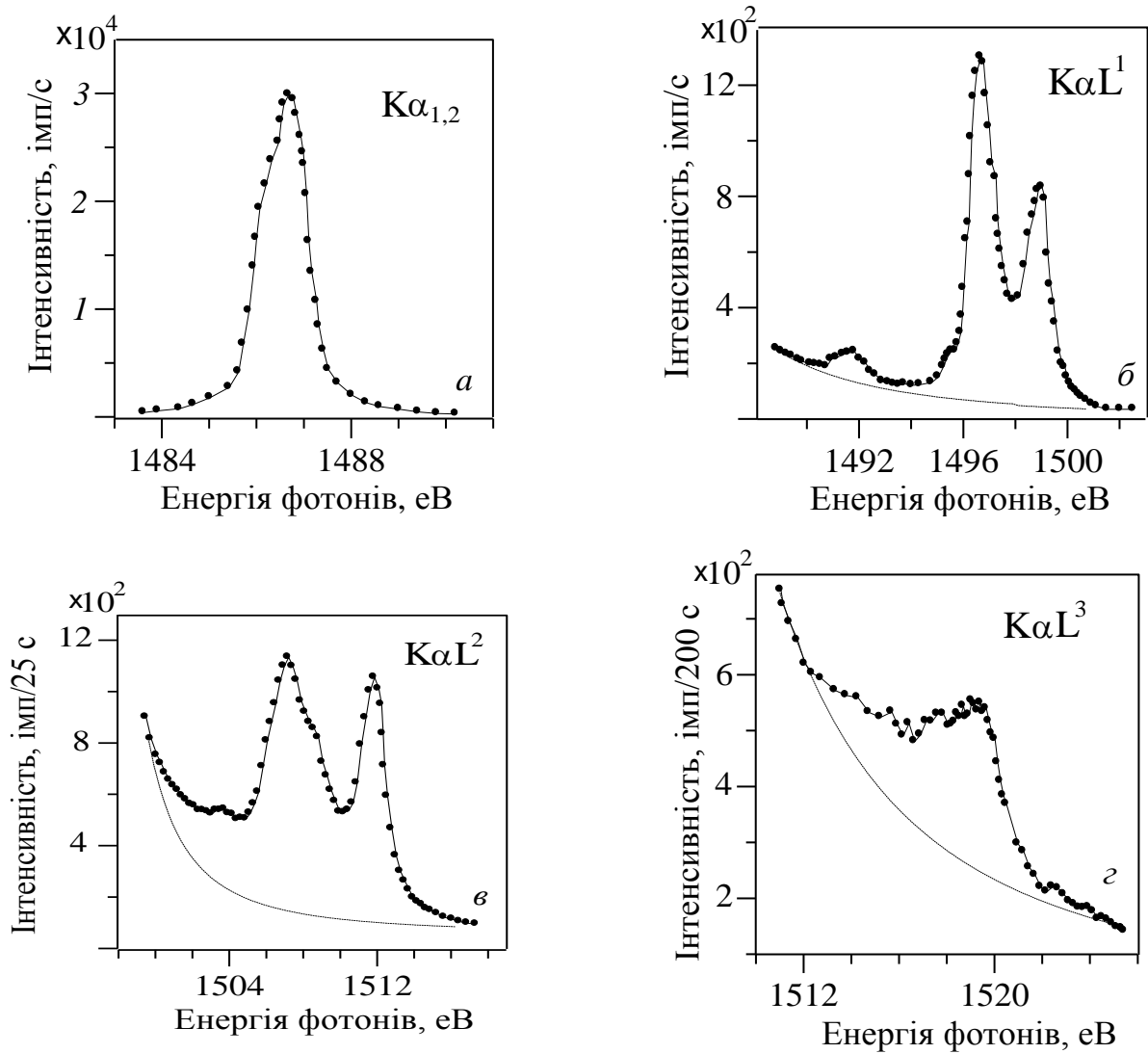


Рис. 12. $K\alpha$ спектр Al: a — $K\alpha_{1,2}$; b — $K\alpha L^1$; v — $K\alpha L^2$; z — $K\alpha L^3$ ($U=25$ кВ).

У табл. 2 представлено експериментальні значення ν , η , ξ та визначені за ними відносні імовірності P_1 , P_2 , P_3 . У подальшому аналізі виконувалося порівняння

Таблиця 2. Параметри $K\alpha L^1$, $K\alpha L^2$ та $K\alpha L^3$ спектрів Al.

Прискорююча напруга, кВ	Відносні інтенсивності			P_1 $\times 10^{-2}$	P_2 $\times 10^{-3}$	P_3 $\times 10^{-5}$
	ν $\times 10^{-2}$	η $\times 10^{-2}$	ξ $\times 10^{-2}$			
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

експериментальних значень P_2 , P_3 з їх розрахунками у наближенні незалежного «струшування» двох та трьох $2p$ електронів при *shake-off* (SO) процесі. Відповідні теоретичні значення визначалися за формулами $P_2^{(SO)} = (5/12)(P_1^{(SO)})^2$ та $P_3^{(SO)} = (5/54)(P_1^{(SO)})^3$ [7]. Приймаючи для Al $P_1^{(SO)} = 6,9 \cdot 10^{-2}$ [8],

отримаємо $P_2^{(SO)} = 2,0 \cdot 10^{-3}$ та $P_3^{(SO)} = 3,1 \cdot 10^{-5}$. На рис. 13, а та б представлено залежності відношень $P_2 / P_2^{(SO)}$ та $P_3 / P_3^{(SO)}$ Al від енергії бомбардуючих електронів. Для порівняння також наведено раніше отримані дані для напівпровідника Si [9]. З рис. 13 видно, що для Al межі зміни відношення складають $P_2 / P_2^{(SO)} = 1,1\text{--}1,7$, тоді як для Si $P_2 / P_2^{(SO)} = 1,4\text{--}1,9$. Аналогічно, для Al межі зміни відношення $P_3 / P_3^{(SO)}$ складають $P_3 / P_3^{(SO)} = 1,7\text{--}2,5$, тоді як для Si $P_3 / P_3^{(SO)} = 3,2\text{--}4,3$.

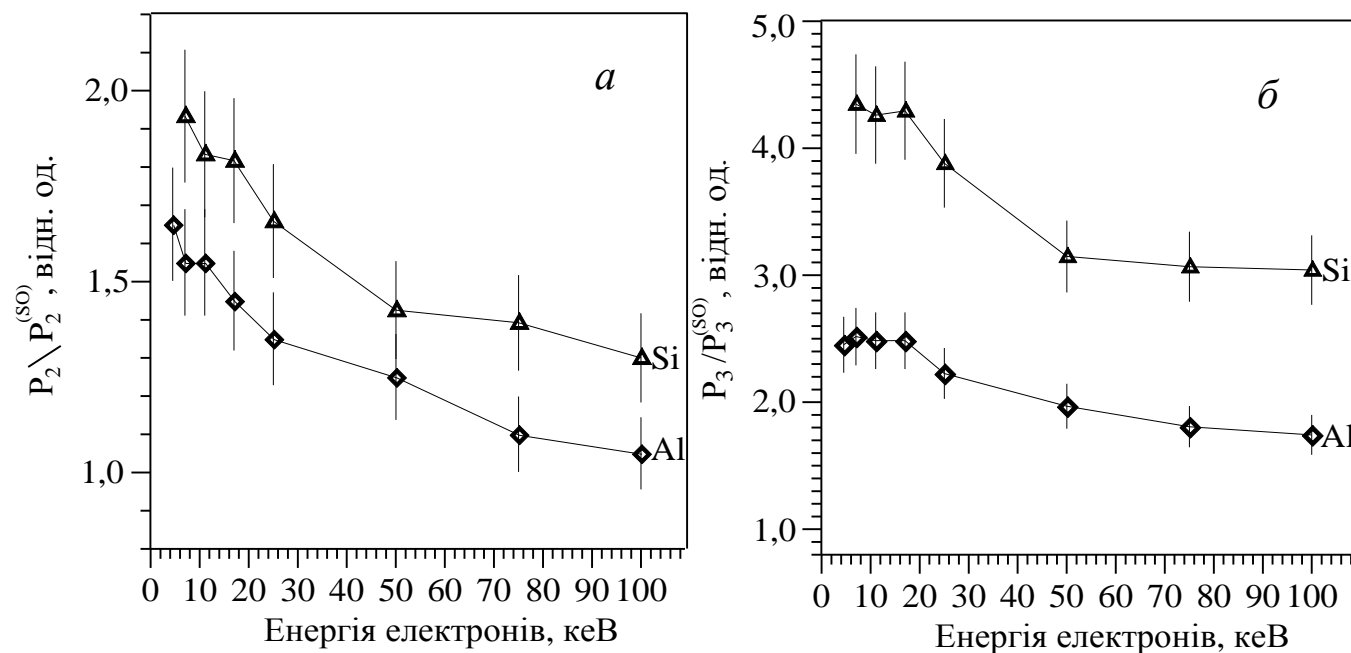


Рис. 13. Залежності $P_2 / P_2^{(SO)}$ (а) та $P_3 / P_3^{(SO)}$ (б) від енергії налітаючих електронів.

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 Al перебіг процесів $1s^{-1}2p^{-2}$ та $1s^{-1}2p^{-3}$ іонізації краще описується у наближенні SO, аніж у напівпровіднику Si. 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 у 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, аніж у напівпровідниках та діелектриках з локалізованими електронними зв'язками. Таким

чином, отримані результати свідчать, 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, а 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 такого врахування також пов'язаний з введенням ефективного радіусу взаємодії R_{eff} .

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 $d = 0,3$ – 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 1,6–2,9 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 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 $1s^{-1}2p^{-2}(^M X_J)2\epsilon p$ 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.

СПИСОК ЦИТОВАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Zhevago N.K. / N.K. Zhevago and V.I. Glebov // *Phys. Lett. A*, –1991.–№ 160. – р. 564.
2. Gary C. / C. Gary, Kaplin V., Kubankin A., Nasonov N., Piestrup M., Uglov S. // *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, –2005. –т. 227.– р. 95.
3. Лапко В.П. / В.П. Лапко, Н.Н. Насонов // *ЖТФ*, –1990. –№ 60. – р. 160–162.
4. Иверонова В. И. Теория рассеяния рентгеновских лучей/ В. И. Иверонова, Г.П. Ревкевич // М: Издательство Московского университета, – 1978.– р. 277.
5. Chattarji D. / D. Chattarji, W. Mehlhorn, V. Schmidt // *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, –1978. – т.13, № 2.– р.97–106.
6. 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.*

7. Боровий М. О. Кореляційні ефекти у рентгенівських емісійних спектрах KL^2 та KL^3 -іонізованих атомів кремнію // *Український фізичний журнал.* – 2001. – т. 46. – № 3 – р. 285 – 288.

8. Kochur A.G. / A.G. Kochur, V.A. Popov // *Journal of Physics B.* – 2006. – т. 39. – № 16. – р. 3335–3344.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Статті у наукових фахових виданнях:

1. Al-Omari M.A.M. The generation features of parametric X-ray radiation in micro sized diamond powders / M.A.M. 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. Нажмуудинов, 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-Омарі, А. В. Сотников, А. С. Старовойтов // *Ядерная физика и инжиниринг.* – 2016. – т. 7. – № 1. – р. 47–52.

Тези наукових доповідей:

6. Alexeyev V.I. Parametric X-ray radiation in the backward geometry under interaction of relativistic electrons with crystals / V.I. Alexeyev, A.N. Elisyeyev, 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. Elisyeyev, 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-Омарі, 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. 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. Кишин, 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.

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 1,6–2,9 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. $150^\circ\text{--}180^\circ$ 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 $\chi = I(^3P)/I(^1P)$ du 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 $1s^{-1}2p^{-1}(^1P)\varepsilon p$ and $1s^{-1}2p^{-1}(^3P)\varepsilon p$, 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.