ВІСНИК

КИЇВСЬКОГО НАЦІОНАЛЬНОГО УНІВЕРСИТЕТУ ІМЕНІ ТАРАСА ШЕВЧЕНКА

ISSN 1728-2411

— ФІЗИКА _

_____ 12/2011 Засновано 1958 року

Публікуються результати експериментальних і теоретичних досліджень у галузях фізики металів, оптики, молекулярної фізики та теплофізики, ядерної фізики. Для науковців, викладачів вищої школи, аспірантів і студентів.

In this edition are published results of experimental and theoretical investigations in fields of physics of metals, optics, molecular physics and thermophysics, nuclear physics. For scientific researchers, teachers, postgraduates, and students.

| ВІДПОВІДАЛЬНИЙ РЕДАКТОР | М. В. Макарець, д-р фізмат. наук, проф. |
|--------------------------|---|
| РЕДАКЦІЙНА КОЛЕГІЯ | В. А. Макара, д-р фізмат. наук, проф., члкор. НАН України; Л. В. Поперенко, д-р фізмат. наук, проф. (заст. відп. ред.); Г. В. Весна, канд. фізмат. наук, ст. наук. співроб. (відп. секр.); С. М. Єжов, д-р фізмат. наук, проф.; С. Й. Вільчинський, д-р фізмат. наук, проф.; І. М. Каденко, д-р фізмат. наук, проф.; М. П. Куліш, д-р фізмат. наук, проф.; В. М. Ящук, д-р фізмат. наук, проф.; Д. А. Гаврюшенко, д-р фізмат. наук, проф. |
| Адреса редколегії | 03127, Київ-127, вул. Глушкова, 2, корп. 1, фізичний факультет 🖀 526 86 76 |
| Затверджено | Вченою радою фізичного факультету 07.09.08 року (протокол № 1) |
| Атестовано | Вищою атестаційною комісією України. Постанова Президії ВАК України № 1-05/6 від 9.06.99 |
| Зареєстровано | Міністерством інформації України. Свідоцтцво про державну реєстрацію КВ № 16291–4763Р від 17.12.2009 |
| Засновник та видавець | Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Видавничо-поліграфічний центр "Київський університет". Свідоцтво внесено до Державного реєстру ДК № 1103 від 31.10.02 |
| Адреса видавця | 01601, Київ-601, б-р Т.Шевченка, 14, кімн. 43 ☎ (38044) 239 31 72, 239 32 22; факс 239 31 28 |

© Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Видавничо-поліграфічний центр "Київський університет", 2011

| Булавін Л., Гаврюшенко Д., Сисоєв В., Якунов П. Вплив фазового переходу на адсорбцію з бінарного розчину4 |
|---|
| Васківський І., Гарасевич С., Слободянюк О., Яхненко М. Аналіз спектрів крс 6-азацитидину та споріднених сполук6 |
| Дегода В., Софієнко А. Вплив мілких пасток на імпульс струму напівпровідникового детектора при поглинанні рентгенівського кванту10 |
| Захарченко І., Крилов О., Неділько С., Робур Л. Оптимізація параметрів лазерів з резонатором на базі інтерферометра Саньяка |
| Левченко С., Ящук В., Кудря В., Ткачук З., Мельник В., Воробйов В. Аутолюмінеснценція систем рибонуклеотидів з білками та можливість спектрального тестування їх взаємодії19 |
| Лопатинська О., Лопатинський А., Казо I., Поперенко Л. Спектроеліпсометричний контроль поверхні композитних матеріалів на основі бориду титану |
| Луцанич С., Кисіль I., Зизак М. Розробка тригера ј/ Ψ мезонів для мюонної системи свм експерименту (gsi/fair/німеччина) |
| Макарець М., Юхименко О. Рівняння для функції просторового розподілу імплантованих іонів та його кумулянтів |
| Прокопець В., Лісова I., Рафаловський Є. Моделювання оптоволоконного сенсора парів органічних розчинників на основі розподіленого брегівського рефлектора40 |
| Стебленко Л., Курилюк А., Науменко С., Кріт О., Руденко О. Вплив складу атмосфери на стабільність магнітомеханічного ефекту44 |
| Теселько П., Пацай Б. Вивчення процесу розпаду твердого розчину кисню в cz-si47 |
| Шевченко М. Новий підхід до рентгенівських досліджень модулюваноїї структури в старіючих металевих сплавах |
| Ящук В., Косач В., Навозенко О., Гражулявічус Й., Гриценко К. Особливості спектральних властивостей органічних сполук 2,7-ди (9-карбазоліл) – 9 - (2-етилгексіл) карбазол та 3,6-ди (9-карбазоліл) – 9 - (2-етилгексіл) карбазол, а також тонких плівок |
| на к сенев для састесувания у фотонці |

- CONTENTS -

| Bulavin L., Gavryushenko D., Sysoyev V., Yakunov P. Influence of phase transition on adsorption from binary solution | 4 |
|--|----|
| Vaskivskyi I., Garasevych S., lakhnenko M., Slobodyanyuk O. Analysis of raman spectra of 6-azacytidine and related compounds | 6 |
| Degoda V., Sofienko A. The influence of shallow traps on the pulse of semiconductor detector at X-ray quantum absorption | 10 |
| Zacharchenko I., Krylov O., Nedilko S., Robur L. Parameters optimization of lasers with based on Sagnac interferometer resonator | 15 |
| Levchenko S., Yashchuk V., Kudrya V., Tkachuk Z., Mel'nik V., Vorob'yov V. Autoluminescence of the ribonucleotides and proteins and the possibility of their interaction spectral testing | 19 |
| Lopatynska O., Lopatynskyi A., Kazo I., Poperenko L., Spectroelipsometric control of the surface of composite materials based on titanium boride | 25 |
| Lutsanych S., Kisel I., Zyzak M. J/ Ψ trigger development for muon detecting system at the cbm experiment (gsi/fair/germany) | 28 |
| Makarets M., Yukhymenko O. Equation for spatial distribution of implanted ions and its cumulants | 34 |
| Prokopets V., Lisova I., Rafalovskiy Y. Modeling of Optic Fiber Sensor of Organic Solvent Vapor Based on Disturbed Bragg Reflector | 40 |
| Steblenko L., Kuryliuk A., Naumenko S., Krit O., Rudenko O. The influence of atmosphere on stability of magnetomechanical effect | 44 |
| Teselko P., Patsaj B. The study of the oxygen solid solution destruction process in cz-si | 47 |
| Shevchenko M., A new approach to the x-ray studies of modulated structure in aged metallic alloys | 50 |
| Yaschuck V., Kosach V., Navozenko O., Grazulevicius J., Grytsenko K. The peculiarities of spectral properties of organic compounds 2,7-di (9-carbazolyl) – 9 - (2-ethylhexyl) carbazole | |

УДК 538.9

Л. Булавін, акад. НАНУ, д-р фіз.-мат. наук, проф., Д. Гаврюшенко, д-р фіз.-мат. наук, доц., В. Сисоєв, д-р фіз.-мат. наук, проф., П. Якунов, асп.

ВПЛИВ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДУ НА АДСОРБЦІЮ З БІНАРНОГО РОЗЧИНУ

Для теоретичного дослідження адсорбції була використана модель двовимірної гратчастої рідини. Розглядався випадок одношарової адсорбції з бінарного розчину. В результаті була знайдена температурна залежність коефіцієнта адсорбції поблизу критичної точки розшарування розчину. Показано, що кореляційні ефекти, що існують поблизу критичної точки, суттєво впливають на процес адсорбції.

For the theoretical study of adsorption the model of two-dimensional lattice liquid was used. The case of one-layer adsorption from binary solution was considered. Temperature dependence of adsorption coefficient at the vicinity of critical point of demixing was found as a result. Correlative effects existing near the critical point were shown to influence considerably on the process of adsorption.

Вступ. На сьогодні існує багато теоретичних і експериментальних даних що стосуються вивчення адсорбції [0]. Результати досліджень вказують на залежність адсорбції не тільки від властивостей поверхні, але і від процесів, що відбуваються в рідині. Зокрема, на адсорбцію можуть вплинути кореляційні ефекти, що виникають поблизу критичної точки в об'ємі системи і зумовлюють її неоднорідність. Таким чином, дослідження адсорбції в подібних випадках є частиною більш широкої проблеми – поведінки неоднорідних термодинамічних систем.

Сьогодні прикладається багато зусиль для побудови загальної теорії, яка була б здатна дати опис таких систем. Зокрема, побудовано теорію скейлінгу обмежених систем [0], розглянуто скейлінгові закони та універсальність критичних явищ у присутності зовнішнього поля [0], проведена перевірка застосовності наявних теорій з допомогою компьютерного моделювання методом Монте-Карло [0]. Також було досягнуто успіхів в експериментальному вивченні таких систем [0, 0].

В даній роботі проводиться теоретичне дослідження одношарової адсорбції [0] з неоднорідного бінарного розчину на поверхню. Для цього була побудована модель гратчастого двовимірного флюїду, що описує поведінку адсорбованої речовини. Оскільки для вивчення контакта розчину зі стінкою необхідно знати термодинамічні характеристики розчину, зокрема його хімічний потенціал, в роботі використані результати, описані нами в [0].

Хімічний потенціал бінарного розчину. В роботі [0] нами був запропонований фундаментальний підхід, що описує поведінку однокомпонентної неоднорідної системи. У роботах [0, 0] даний формалізм було узагальнено на випадок двокомпонентної системи, в результаті чого було отримане рівняння розподілу концентрації бінарного розчину в обмеженій системі. В даній статті ці результати будуть використані для дослідження адсорбції з бінарного розчину на поверхню.

Для опису термодинамічної поведінки неоднорідного бінарного флюїду в обмеженій системі застосуємо гратчасту модель рідини. Ми будемо розглядати систему з кубічною решіткою, у якій вздовж вісі 0z діє зовнішнє поле u(z), крім того, система в цьому напрямку обмежена, тому z може змінюватись в межах [-L,L]. Така ситуація реалізується в однорідному гравітаційному полі або в системі з плоско паралельними стінками, біля яких діє пристінковий потенціал, у відсутності гравітаційного поля. В роботі [0] було показано, що ця модель дозволяє отримати такий вираз для $u_{BA}(z)$ – потенціальної енергії частинок бінарного розчину в зовнішньому полі:

$$u_{BA}(z) = \mu_0 - \mu(z) + \Delta \mu_{cor}(z)$$
(1)

де $\Delta \mu_{cor}$ – внесок в різницю хімічних потенціалів від кореляційних ефектів, для якого було отримано віраз у вигляді нескінченного ряду.

В роботі [0] це рівняння було розв'язане в наближенні плавної неоднорідності [0] для випадку плоскопаралельної пори з експоненціальним пристінковим потенціалом. В результаті було отримано такий вираз для просторового розподілу хімічного потенціалу:

$$\Delta \mu(z) = 2B_{BA} e^{-kL} \kappa^2 \left[-\frac{k}{\kappa} \frac{1}{k^2 - \kappa^2} \cdot \frac{\operatorname{sh} kL}{\operatorname{sh} \kappa L} \operatorname{ch} \kappa z + \frac{1}{k^2 - \kappa^2} \operatorname{ch} kz + \frac{1}{k\kappa^2 L} \operatorname{sh} \kappa L \right]$$
(2)

В даній роботі ми використаємо отриманий результат для дослідження адсорбції.

Модель одношарової адсорбції. Для дослідження адсорбції ми використаємо модель двовимірного гратчастогї рідини. Розглянемо відому модель флюїду з N_1 частинок (молекул), взаємодія між якими описується парним потенціалом $\phi(r)$, де r – відстань між частинками рідини. Для переважної кількості рідин цей потенціал має значне відштовхування на малих відстанях (або твердий кор), потенціальну яму та хвіст із достатньо швидким спаданням. Типовим прикладом такого потенціалу є відомий потенціал Леннарда-Джонса. Будемо вважати, що ці частинки можуть займати обмежену кількість положень в одному з N вузлів достатньо густої регулярної плоскої двовимірної ґратки. Оскільки при r = 0 потенціальна енергія відштовхування прямує до нескінченості, в кожному вузлі одночасно може бути розташовано не більше однієї частинки. Крім того, відстань між частинками r_0 будемо вважати такою, що між цими молекулами існують лише достатньо короткодіючі сили взаємодії, так що систему можна віднести до однієї з систем із статистикою найближчих сусідів у ґратці – ґратчастого флюїду. В ґратчастому флюїді стан А відповідає зайнятому вузлу, стан В – вільному. Очевидно, що кількість зайнятих вузлів N_1 , кількість вакантних $N - N_1$.

Статистичну суму такої системи можна записати у вигляді:

$$Q(N_1, N, T) = j^{N_1}(T) \sum_{i=1}^{\Omega} \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right), \qquad (3)$$

де сумування виконується за статистичними конфігураціями (мікростанами),

© Булавін Л., Гаврюшенко Д., Сисоєв В., Якунов П., 2011

 $N_1 = 0$

що відповідають заданим параметрам N та N₁, $\Omega = \frac{N!}{N_1!(N-N!)} - 3агальна кількість конфігурацій в$

цьому випадку, j(T) – неконфігураційна частина статистичної суми для кожної з частинок системи, пов'язана з динамікою зміни положення частинки у вузлах ґратки, E_i – сумарна енергія взаємодії пар частинок сорту А в даній конфігурації.

Для продовження опису системи необхідно конкретизувати ансамбль, в рамках якого розглядається поведінка ґратчастого флюїду. Будемо розглядати випадок, коли кількість частинок N_1 не є зовнішнім параметром, тобто коли в системі фіксуються хімічний потенціал двовимірного флюїду μ_f , число вузлів двовимірної ґратки N та температура T. В цьому випадку ми повинні розглядіти поведінку такої двовимірної системи в рамках великого канонічного ансамблю, і для великої статистичної суми $\Xi(\mu, N, T)$ можні записати наступний вираз:

$$\Xi\left(\mu_{f}, N, T\right) =$$

$$= \sum_{N_{i}=0}^{N} \exp\left(\frac{N_{i}\mu_{f}}{kT}\right) j^{N_{i}}(T) \sum_{i=1}^{\Omega} \exp\left(-\frac{E_{i}}{kT}\right)$$
⁽⁴⁾

Вираз для великої статистичної суми можна записати у більш явній формі, конкретизувавши вигляд енергії взаємодії пар частинок у випадку взаємодії виключно найближчих сусідів. Якщо в *i*-ій конфігурації існує N_{AA}^{\prime} пар найближчих сусідів AA, і кожна пара має енергію $\varepsilon_{AA} = \phi(r_0)$, то очевидно, що енергію і E_i взаємодії пар частинок сорту A можна подати у вигляді $E_i = \varepsilon_{\scriptscriptstyle AA} N^i_{\scriptscriptstyle AA}$,а вираз для великої статистично суми переписати наступним чином:

$$\Xi\left(\mu_{f}, N, T\right) =$$

$$= \sum_{N_{1}=0}^{N} \exp\left(\frac{N_{1}\mu_{f}}{kT}\right) j^{N_{1}}\left(T\right) \sum_{i=1}^{\Omega} \exp\left(-\frac{\varepsilon_{AA}N_{AA}^{i}}{kT}\right) \quad (5)$$

Розглянемо процес одношарової адсорбції із бінарного розчину з концентрацією х на поверхню. Найбільш чітко така адсорбція реалізується на поверхні, модифікованій спейсорами, що забезпечує, з теоретичної точки зору, виключну двовимірність системи адсорбату на адсорбенті.

Розглянемо адсорбуючу поверхню, яка містить Nвузлів (спейсорів), кожний з яких може адсорбувати одну молекулу, до яких приєднано N_1 молекул адсорбату. Припустимо, що ця поверхня знаходиться в контакті з флюїдом – джерелом частинок-адсорбатів. В цьому випадку для великої статистичної суми двовимірної системи на поверхні адсорбенту ми можемо записати вираз, цілком аналогічний виразу (5), де тепер μ_f – хімічний потенціал адсорбованих молекул, а E_i – зміна енергії молекул адсорбату в наслідок адсорбції.

Як відомо, в стані термодинамічної рівноваги

$$\mu_f = \mu(T, p, x) \tag{6}$$

де µ – хімічний потенціал розчиненої речовини (адсорбату в розчині). Тому в цьому випадку у виразі (5) замість хімічного потенціалу двовимірного флюїду можна підставити хімічний потенціал розчину, і вираз для великої статистичної суми набуває вигляду

$$\Xi(\mu_{f}, N, T) =$$

$$= \sum_{N_{1}=0}^{N} \exp\left(\frac{N_{1}\left(\mu(T, p, x) - \varepsilon_{0} - \frac{1}{2}c\varepsilon_{AA}\right)}{kT}\right) \times (7)$$

$$\times j^{N_{1}}(T) \sum_{i=1}^{\Omega} \exp\left(-\frac{\varepsilon_{AA}N_{AA}^{i}}{kT}\right)$$

Макроскопічною величиною, що вимірюється експериментально та характеризує процес адсорбції, є коефіцієнт адсорбції θ , який визначається співвідношенням:

$$\theta = \frac{\langle N_1 \rangle}{N} \tag{8}$$

Таким чином,

$$\theta(x) = \frac{kT}{N} \frac{\partial}{\partial \mu} \ln \Xi(\mu, N, T)$$
(9)

Для визначення залежності коефіцієнту одношарової адсорбції θ від x розглянемо випадок, коли можна знехтувати взаємодією між сусідами у ґратці, тобто відхи-

леннями множників вигляду
$$\exp\!\left(-rac{arepsilon_{AA}N^i_{AA}}{kT}
ight)$$
 від одини-

ці. Така ситуація має місце або за достатньо високих

температур ($\frac{\varepsilon_{\scriptscriptstyle AA}}{kT}\!\ll\!1$, тобто для випадку температур, набагато більших за критичну температуру неперервного фазового переходу "двовимірна рідина – двовимірний газ"), або за малих значень θ .

Таким чином, для коефіцієнту адсорбції $\theta(x)$ отримаємо наступний вираз:

$$\theta = \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{\mu(T, p, x) - \varepsilon_0}{kT}\right)}$$
(10)

де ϵ_0 – параметр, що характеризує взаємодію між молекулою та спейсором.

Результати та висновки. Для дослідження температурної залежності коефіцієнта адсорбції heta в бінарному розчині, використаємо отриманий раніше вираз для хімічного потенціалу (). Таким чином ми отримаємо вираз для θ , що справедливий для системи, яка знаходиться в стані поблизу критичної точки розшарування. На рис. 1 представлена температурна залежність коефіцієнта адсорбції при різних значеннях \mathcal{E}_{n} .



Рис. 1. Температурна залежність коефіцієнта

1 – локальне наближення

УДК 535.375.5

3 -

Отримані результати показують, що кореляційні ефекти, які виникають в системі поблизу критичної точки розшарування значно впливають на процес адсорбції. Можна бачити, що врахування кореляційних ефектів призводить до зміни коефіцієнта адсорбції з температурою. В той же час, якщо кореляційними доданками знехтували, значення θ залишається сталим.

Отримані результати можуть бути використані при експериментальних дослідженнях адсорбції з багатокомпонентних рідинних систем.

1. Булавин Л.А, Гаерюшенко Д.А., Сысоев В.М. // Журнал физической химии. 2004. Т. 78 (11). С. 2039–2042. 2. Булавін Л.А, Гаврюшенко Д.А., Сисоев В.М., Якунов П.А. // Доповіді Академії наук України. 2008. №8. С. 78–83. 3. Булавин Л. А., Гаврюшенко Д. А., Сысоев В. М., Якунов П. А. // Журнал физической химии. 2010. Т. 84 (2). С. 1–4. 4. Голуб О.А., Сисоев В.М., Прилуцький Ю.І., Педь Л.П. // Доповіді національної академії наук України. 2006. № 6. С. 132–136. 5. Лакоза Е.Л., Сысоев В.М., Чалый А.В. // ЖЭТФ. 1973 Т. 65 (2). 6. Adamson A.W., Gast A.P. Physical chemistry of surfaces. – New York, Chichester, Weinheim, Brisbane, Singapore, Toronto: A. John Wiley & Sons, 1997 р. 7. Au-Yang H., Fisher M. // Phys. Rev. B: Condens. Matter. 1980. Vol. 21 (9). P. 3956-3970. 8. Law B.// Progress in Surface Science. 2001. Vol. 66 (6-8). P. 159-216. 9. Liu A., Fisher M. // Phys. Rev. A. 1989. No 40 (12). P. 7202–7221. 10. Maciolek A., Evans R., Wilding N. // J. Chem. Phys. 2003. No 119. P. 8663. 11. Sengers J., Leeuven J. van // Physica A. 1986. No 138A. P. 1–21.

Надійшла до редколегії 15.09.10

І. Васківський, студ., С. Гарасевич, канд. фіз.-мат. наук, ст. наук. співр., О. Слободянюк, д-р фіз.-мат. наук, проф., М. Яхненко, асп.

АНАЛІЗ СПЕКТРІВ КРС 6-АЗАЦИТИДИНУ ТА СПОРІДНЕНИХ СПОЛУК

Досліджено спектри КРС аномального нуклеозиду 6-азацитидину та деяких споріднених сполук. Отримано спектри мікрокристалічних зразків та розчинів цих сполук у воді і важкій воді та проведено їх порівняльний аналіз. На основі розрахунків та результатів комп'ютерного моделювання запропоновано нове пояснення виникнення позірних високочастотних зсувів у спектрах КРС при дейтеруванні.

Raman spectra of anomalous nucleoside 6-azacytidine and some related compounds were studied. Raman spectra were recorded from microcrystalline samples and from their solutions in water and heavy water. Completed comparative analysis and interpretation of some Raman peaks. Based on computer modeling suggested a new explanation of aparent high frequency (blue) shifts of some Raman peaks under deuteration.

Вступ. Актуальність вивчення нуклеозидів зумовлена тим, що природні або канонічні нуклеозиди (аденозин, гуанозин, уридин, цитидин, тимидин) входять до складу нуклеінових кислот. Усі канонічні нуклеозиди підтримують утворення обох найпоширеніших форм ДНК: А і В. Поряд з ними синтезовано значну кількість так званих аномальних нуклеозидів, які відрізняються тим, що в них деякі структурні елементи заміщені іншими, внаслідок чого вони здатні впливати на процеси нуклеїнового обміну і завдяки цьому можуть бути основою для створення нових лікарських препаратів.

У роботі досліджували аномальний нуклеозид 6-азацитидин (6-аzаС), що є антиметаболітом нуклеїнового обміну та перспективним препаратом широкої терапевтичної дії. Опис його хімічного синтезу та перші вказівки на онкостатичний ефект з'явилися в літературі в кінці 50-х – на початку 60-х років ([6] та наведені там посилання). Після цього в Інституті молекулярної біології та генетики НАН України було розроблено оригінальні препаративні методи синтезу 6-аzаС, котрі є передумовою створення промислової технології виробництва препарату. В експериментах на тваринах виявилася висока протипухлинна та антилейкозна активність 6-аzаС щодо широкого спектра перещеплюваних пухлин та лейкозів. На культурі тканини було продемонстровано дію препарату як інгібітора вірусної репродукції. Дослідження фармакінетики 6-azaC свідчить про значне уповільнення виведення його з крові порівняно з іншими антиметаболітами (до того ж набагато токсичнішими), а також низьку метаболічну трансформацію, що дозволяє рекомендувати цей препарат для застосування із введенням з більшими інтервалами для підтримання необхідної концентрації.

Робота присвячена вивченню спектрів КРС 6-azaC, низки його похідних та споріднених сполук з метою дослідження їхніх фізико-хімічних характеристик, що можуть бути відповідальними за терапевтичний ефект.

Досліджувані речовини. У роботі досліджували спектри КРС аномального нуклеозиду 6-азацитидину (6-азаС) та деяких споріднених до нього сполук, зокрема, цитозину та канонічного цитидину. Структурні формули досліджуваних речовин наведені на рис. 1.

Цитозин (C₄H₅N₃O) є азотною основою, натуральною похідною піримідину. Вона входить до складу нуклеотидів ДНК та РНК. У молекулах ДНК цитозин утворює три водневі зв'язки з гуаніном.

Цитидин ($C_9H_{13}N_3O_5$) – це нуклеозид утворений цитозином та рибозою. Він входить до складу РНК.

6-азацитидин ($C_8 H_{12} N_4 O_5$) – це аномальний нуклеозид, який відрізняється від канонічного цитидину, тим групу CH в 6-му положенні піримідинового кільця заміщено на атом N.



Рис. 1. Структурні формули досліджуваних речовин. а – 6-азацитидин, б – цитидин, в – цитозин

Дослідження спектрів КРС нуклеозидів. Спектри КРС досліджуваних сполук реєстрували в діапазоні 30–3800 см⁻¹ лазерним спектрометром на базі потрійного монохроматора Coderg T-800, обладнаного системою лічби фотонів та комп'ютерним керуванням. На рис.2 наведено оглядові спектри досліджуваних речовин у мікрокристалічному стані.

В області середніх частот від 120 до 1300 см⁻¹ спектр КРС 6-азацитидину схожий на спектри інших досліджених в роботі речовин, зокрема, близькі за частотами або практично співпадають інтенсивні лінії КРС поблизу 200 см⁻¹, 760–780 см⁻¹ та 1290 см⁻¹.



Рис. 2. Оглядові спектри КРС мікрокристалічних порошків досліджуваних речовин

Були досліджені спектри КРС водних розчинів нуклеозидів цитидину, 6-азацитидину, а також цитозину різних концентрацій. Такі дослідження важливі, оскільки застосування 6-азацитидину можливі переважно у вигляді розчинів. З іншого боку, порівняння спектрів КРС речовин у кристалічній формі та їх розчинів допомагає в інтерпретації складних спектрів КРС кристалів, оскільки в спектрах КРС розчинів проявляються лише внутрішньомолекулярні коливання [4].

На рис. З наведено спектри КРС 6-азацитидину в формі мікрокристалічного порошку та його насиченого водного розчину. Видно, що лінії КРС у низькочастотній ділянці спектру мікрокристалічного порошку (<500 см⁻¹) зникають при його розчиненні у воді. Смуги і лінії КРС, які залишаються, відповідають внутрішньомолекулярним коливанням окремих молекул, оточених молекулами розчинника. В області частот 500–1800 см⁻¹ майже всім лініям і смугам, що спостерігаються в спектрі мікрокристалічного порошку можна поставити у відповідність лінії і смуги в спектрі КРС водного розчину, які або співпадають з ними або дещо зсунуті відносно них.





Така сама картина спостерігається при порівнянні спектрів КРС водного розчину цитидину та мікрокристалічного порошку цитидину [7].

Спектри 6-АС були отриманні нами вперше, принаймні публікації на цю тему невідомі. Що стосується спектрів КРС цитидину, то вони представленні та обговорювались в ряді робіт, де спектри збігаються з нашими. Інтерес являє робота [5], в якій досліджено спектри КРС водних розчинів дезоксицитидину, який є близьким за хімічним складом та структурою до цитидину. Відмінність молекули дезоксицитидину від молекули цитидину полягає лише в тому, що з однієї з гідроксильних груп, приєднаних до кільця рибозного залишку (глікона), вилучено атом кисню.

Оскільки в спектрах КРС рибози в мікрокристалічному стані та у водному розчині в області частот 700–1700 см⁻¹ не спостерігається ніяких смуг або ліній, а спектри молекул цитидину та дезоксицитидину у водних розчинах в цій області частот практично однакові, то можна інтерпретацію ліній та смуг в спектрі КРС дезоксицитидину, зроблену в роботі [4], поширити на одержані нами спектри КРС канонічного цитидину та 6-азацитидину у водних розчинах.

Так, в роботі [5] вузька інтенсивна лінія при 785 см⁻¹ (в спектрі цитидину при 784 см⁻¹) віднесена до "дихальної" моди піримідинового кільця.

Характерному дублету в спектрі КРС дезоксицитидину при 1256–1293 см⁻¹ в спектрі цитидину відповідає подібний за формою і співвідношенням інтенсивностей компонент дублет 1242–1292 см⁻¹. Його високочастотна компонента в спектрі КРС дезоксицитидину при 1293 см⁻¹ (в спектрі цитидину при 1292 см⁻¹) віднесена до валентного коливання C(2)-N(3).

Смуги при 1532 см⁻¹ та 1605 см⁻¹ (в спектрі цитидину при 1530 см⁻¹ та 1606 см⁻¹) віднесені до деформаційних коливань NH₂.

Широка смуга при 1662 см⁻¹ (в спектрі цитидину при 1658 см⁻¹) віднесена до валентних коливань С = О.

Зважаючи на подібність спектрів КРС молекул цитидину та 6-азацитидину у водних розчинах можна висловити припущення щодо походження деяких смуг в спектрі КРС 6-азацитидину. Лінія при 758 см⁻¹ так само, як у випадку цитидину, може бути віднесена до "дихальної" моди піримідинового кільця. Лінія при 1289 см⁻¹ може бути віднесена до валентного коливання С₍₂₎–N₍₃₎. Смуги при 1538 і 1612 см⁻¹ ймовірно пов'язані з де-

Смуги при 1538 і 1612 см⁻¹ ймовірно пов'язані з деформаційними коливаннями NH_2 , але теоретичні розрахунки на це не вказують. Для лінії при 1538 см⁻¹ спостерігається коливання вздовж зв'язку $C_{(4)}$ – $C_{(5)}$, для лінії при 1612 см⁻¹ – вздовж зв'язку $C_{(4)}$ – NH_2 відповідно. Широка смуга при 1670 см⁻¹ може бути віднесена до валентного коливання подвійного зв'язку C = O. Але в теоретичному розгляді крім цього коливання спостерігається також коливання типу NH_2 .

При загальній подібності спектрів КРС молекул цитидину та 6-азацитидину у водних розчинах найбільш помітною відмінністю між ними є відсутність у спектрі 6-азацитидину смуги-відповідника низькочастотній компоненті дублету 1242–1292 см⁻¹ в спектрі цитидину. Це можна вважати основним спектроскопічним проявом переходу від молекули цитидину до молекули 6-азацитидину шляхом заміни групи СН в шостій позиції в кільці основи атомом азоту.

На рис. 4 наведені спектри КРС розчинів молекул 6-азацитидину у воді та у важкій воді. При розчиненні 6-азацитидину в дейтерованій воді деякі лінії зсунулися як в низькочастотний так і в високочастотний бік на відміну від водних розчинів, де усі зсуви відбуваються в один бік відносно спектрів КРС мікрокристалічного 6-АС [1, 2, 8]. Так, наприклад, лінія при 758 см⁻¹ в спектрі водного розчину 6-азацитидину зсувається приблизно на 10 см⁻¹ в низькочастотний бік при заміні розчинника на важку воду. Такий результат є очікуваним і може бути пояснений заміною атома H на вдвічі важчий атом дейтерію, що і викликає зменшення частоти коливань відповідної моди.

Несподіваним є спостереження зсуву лінії при 1288 см⁻¹ приблизно на 13 см⁻¹ у високочастотний бік, оскільки зазвичай при заміщенні більш важким ізотопом відбувається зменшення частоти коливань моди.

Аналогічна картина спостерігається при порівнянні спектрів КРС водного розчину цитидину та цитидину розчиненого в дейтерованій воді. Величина зсуву лінії при 784 см⁻¹ водного розчину цитидину при заміні розчинника на важку воду складає приблизно 12,5 см⁻¹ у низькочастотний бік, а аномальне зміщення у високочастотний бік ліній спектру КРС дублету водного розчину цитидину при 1244 см⁻¹ та при 1292 см⁻¹ - на 6,4 см⁻¹ та 5,3 см⁻¹ відповідно.

1 – 6-азацитидин H₂(



Частотний зсув, см-1

Рис. 4. Спектри КРС розчину 6-азацитидину в воді та в важкій воді

У найпростішій моделі осцилятора власна частота коливань визначається як

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}}$$
,

де *k* – силова стала. З цієї формули видно, що при збільшенні маси і незмінному *k* при дейтеруванні частота коливань має зменшуватися. У випадку молекули власні частоти коливань визначаються матрицею силових констант та зведеною масою молекули й так само мають зменшуватись при збільшленні зведеної маси і незмінній матриці силових констант. Аномальний ізотопний зсув міг би вказувати на збільшення силової сталої, наприклад, при зміні конформації молекули 6-азацитидину. Також він може міг би бути пов'язаний або з частковим дейтеруванням молекул 6-азацитидину (короткохвильовий схил лінії при 1288 см⁻¹), або із самим оточенням. Адже як підтвердили рентгеноструктурні дослідження, 6-азацитидин та похідні сполуки мають сильні водневі зв'язки, в тому числі й внутрішньомолекулярні. При заміщенні дейтерієм деяких атомів водню в молекулі нуклеозиду можуть утворюватись додаткові водневі або дейтеровані зв'язки, що і впливають на характер аномального ізотопного зсуву [1,8].

Комп'ютерне моделювання спектрів КРС. Моделювання проводилось з використанням програмого пакету для квантово-хімічних розрахунків Gaussian 03. Спектри було змодельовано для вільних молекул та для розчинів у воді. Оптимізація геометрії і моделювання внутрішньо молекулярних коливань проводилось з використанням гібридного функціоналу електронної густини B3LYP, в split-valence базисі 6 – 31 + G(d,p). Для моделювання розчинів використовувалась модель РСМ.

Оскільки експериментально отримані спектри КРС досліджуваних речовин в мікрокристалічному стані мало відрізняються від спектрів у розчинах і лінії, що викликають найбільший інтерес, відповідають внутрішньомолекулярним коливанням, можна очікувати, що змодельовані спектри для вільних молекул будуть добре узгоджуватись з експериментальними спектрами речовин у розчинах та в мікрокристалічному стані [9].



Рис. 5. Експериментальні і розрахункові спектри КРС розчинів 6 - азацитидину

На рис. 5 наведено експериментальні та розрахункові спектри розчинів 6-азацитидину у воді та у важкій воді. Експеримент і розрахунки добре узгоджуються. Положення лінії в змодельованих спектрах відповідають експериментальним в межах похибок методу моделювання. Крім того, зсуви ліній при дейтеруванні добре узгоджуються з експериментом як за напрямом зсуву, так і за його величиною. Зокрема, лінія поблизу 760 см⁻¹ зсувається на 12,5 см⁻¹ в бік низьких частот в експерименті і на 12,3 см⁻¹ в розрахунках. Лінія поблизу 1290 см⁻¹ зсунулась в бік високих частот на 13,6 см⁻¹ в експериментальних спектрах і на 7,4 см⁻¹ – в розрахункових.Так само добре узгоджуються розрахункові та експериментальні спектри КРС цитидину та цитозину, розчинених в воді та у важкій воді.

Спектри КРС розраховувались для вільних молекул. При цьому, для моделювання розчинів у важкій воді проводилось наступним чином: молекула частково дейтерувалась і для такої дейтерованої молекули рахувались спектри у вільному стані. Гарне узгодження з експериментом ще раз підтверджує, що зміни в спектрі пов'язані не з зовнішнім впливом розчинника, а саме з дейтеруванням самої молекули. Це також підтверджується спеціальними експериментами в яких порівнювались спектри КРС мікрокристалів вихідних речовин та перекристалізованих з насичених розчинів у важкій воді [2,9]. Проте при цьому залишається незрозумілою причина як спостережуваних так і розрахованих високочастотних зсувів ліній в спектрі при збільшенні маси атомів в молекулі.

Складність аналізу трансформацій експериментального спектру КРС досліджуваних розчинів при дейтеруванні полягає в тому, що при заміні водню на дейтерій в молекулі, маса відповідного атома збільшується вдвічі, що спричинює дуже сильні зміни в спектрі. Це суттєво ускладнює пошук відповідних ліній у спектрах дейтерованої й недейтерованої сполуки. На відміну від зсувів ліній у спектрах при зміні температури, концентрації, зовнішнього поля та інших парметрів, які можна змінювати неперервно і, таким чином, слідкувати за еволюцією спектру, яка теж має переважно неперервний характер, при експериментальному вивченні ефектів ізотопного заміщення немає можливості змінювати масу атомів з кроком меншим за 1 а.о.м. Натомість при комп'ютерному моделюванні є можливість змінювати масу атома з будь-яким кроком. Було проведено такі розрахунки зі зміною маси "водню" в молекулі від 1 а.о.м. до 2 а.о.м. з кроком 0,1. Оскільки, найбільший інтерес викликає лінія поблизу 1290 см⁻¹, яка зсувається в бік високих частот при дейтеруванні, надалі спостерігатимемо за цією лінією на графіках. Залежність частотного

положення коливних мод в околі 1290 см⁻¹ в спектрі КРС цитозину від маси заміщених "воднів" в молекулі 6-азацитидину зображено на рис. 6 (а). Для цитидину та 6-азацитидину поведінка коливних мод аналогічна [9].



Рис. 6. Еволюція частоти а – та інтенсивності б – мод поблизу 1290 см⁻¹ в спектрі КРС цитозину при дейтеруванні

Результати розрахунків показують, що при зростанні маси m_H атома водню частоти всіх мод внутрішньо-молекулярних коливань зменшуються. Зокрема, з графіка на рис. 6 (а) видно, що поблизу 1290 см⁻¹ є два коливання (C20 і C21). В недейтерованій молекулі, поблизу 1290 см⁻¹ спостерігаємо моду C20. При при збільшенні маси m_H частота моди C20 зменшується і розрахована інтенсивність відповідної лінії КРС спадає (рис. 6 (б)), а на її місце зсувається мода C21, інтенсивність відповідної збільшується. Зміна інтенсивності лінії КРС при збільшенні маси m_H пов'язана зі зміною форми відповідних нормальних коливань, як зумовлює в свою чергу, зміну других похідних поляризованості молекули.

Таким чином, видимий зсув у спектрах КРС 6-азацитидину та споріднених сполук при їх дейтеруванні, не пов'язаний зі збільшенням частоти власних коливань. Він є наслідком зміни форми коливань і, як наслідок, зміни інтенсивностей сусідніх мод. При цьому всі власні частоти зменшуються.

Висновки. У роботі було вперше виміряно спектри КРС розчинів аномального нуклеозиду 6-азацитидину у воді та у важкій воді. Також досліджено спектри КРС цитидину та цитозину в розчинах та в кристалічній формі. Проведено співставлення спостережуваних смуг КРС та коливних рухів структурних елементів вищезазначених сполук.

На підставі порівняння спектрів досліджених речовин та аналізу літературних даних по спектрам КРС цих та споріднених речовин запропоновано інтерпретацію походження ряду смуг в спектрі КРС 6-азацитидину. Основним спектроскопічним проявом переходу від молекули цитидину до молекули 6-азацитидину шляхом заміни групи СН в шостій позиції на кільці атомом азоту можна вважати відсутність у спектрі 6-азацитидину смуги-відповідника низькочастотній компоненті дублету 1242–1292 см⁻¹ в спектрі цитидину.

Встановлено спектроскопічні ознаки дейтерування нуклеозидів. Найбільш цікавою спектроскопічною особливістю є зсув смуг в спектрах КРС 6-аzaC та цитидину у бік більших частот (так званий "блакитний зсув") як при розчиненні у важкій воді, так і після перекристалізації цього розчину. Як показують розрахунки, такі зсуви є лише позірними і не пов'язані зі збільшенням частот власних коливань, зумовлені зміною форми коливань при дейтеруванні, яка супроводжується перерозподілом інтенсивностей ліній КРС сусідніх коливних мод. 1. Слободянюк А.В., Гарасевич С.Г., Яхненнко М.С. Аномальные частотные сдвиги в спектрах КРС дейтерированных цитидина и 6-аза-цитидина / // В коллективной монографии "Комбинационное рассеяние – 80 лет исследований" (под ред. В.С. Горелика),. ФИАН РАН. Москва. 2008. 2. Garasevych S., Iakhnenko M., Slobodyanyuk O. and Vaskivskyi I. Abnormal Shifts in Raman Spectra of Deuterated Cytidine and 6-Azacytidine: Experimental and Calculated // Methods and Applications of Computational Chemistry, Third International Symposium — 28 June- 2 July 2009. — Odesa, Ukraine. 3. Garasevych S., lakhnenko M., Slobodyanyuk O. and Vaskivskyi I. Abnormal Shifts in Raman Spectra of Deuterated Cytidine and 6-Azacytidine: Experimental and Calculated // Methods and Applications of Computational Chemistry, Third International Sympo-sium — 28 June – 2 July 2009. — Odesa, Ukraine. 4. *lakhnenko M., Garasevich S., Slobodyanyuk O., Tokar V.* Spectroscopic Features of Interaction of Azanucleoside with Water and Organic Solvents // Abstract book of XIX International School-Seminar "Spectroscopy of Molecules and Crystals" — 2009. Beregove, Crimea, Ukraine. 5. Jang N. H. The Coordinational Chemistry of DNA Nucleosides on Gold Nanoparticles as a Probe by SERS // Bull. Korean Chem. Soc. - 2002. - Vol.23. - No.12. 6. Skoda J. Mechanism of action and application of azapyrimidines Progr. Nucl. Acid Res. —1963, Vol. 2. 7. Slobodya-nyuk O., Garasevych S., lakhnenko M., Vaskivskyi I. Effect of water solvent on Raman spectra of spectra of biologically active molecules // Abstracts Book Of 5th International Conference "Physics of liquid matter: modern problems", — May 21–24, 2010. Kyiv. 8. Slobody-anyuk O., Alexeeva I., Garasevych S., Hovorun D., Palchykovska L., Yakhenko M. Raman Study of Biologically Active Aza-pyrimidine Nucleosides solutions // 4th International Conference "Physics of Liquid Matter: Modern Problems" — May 23–26, 2008. — Kyiv, Ukraine. 9. Slobodyanyuk O., Garasevych S., Jakhenko M., Vaskivskyi I., Transfermetion ef Conservence of Conservetiations and Patients. Transformation of Raman Spectra of 6-azacytidine and Related Compounds Under Deuteration // AIP Conference Proceedings of XII International Conference on Raman Spectroscopy. — August 8-13, 2010. — Boston, MA, USA.

Надійшла до редакції 31.01.11

УДК 535.37

В. Дегода, д-р.фіз.-мат. наук, А. Софієнко, асп.

ВПЛИВ МІЛКИХ ПАСТОК НА ІМПУЛЬС СТРУМУ НАПІВПРОВІДНИКОВОГО ДЕТЕКТОРА ПРИ ПОГЛИНАННІ РЕНТГЕНІВСЬКОГО КВАНТУ

Запропонована система розрахунку імпульсу струму, який виникає при поглинанні рентгенівського кванту в напівпровідниковому детекторі, що містить мілкі пастки. При розрахунках враховується дифузія нерівноважних носіїв заряду, а для випадку значної концентрації пасток вперше застосовується функція розподілу по кількості локалізацій за час дрейфу. Показано, що імпульс струму можна представити у вигляді простої апроксимуючої функції.

We propose the system for calculating the pulse of current in the absorption of X-ray photon in the semiconductor detector, which contains the small traps. In the calculations take into account the diffusion of nonequilibrium charge carriers, as in the case of a large concentration of traps for the first time used the distribution function of the number of locations during the drift to the electrodes. The pulse of current can be represented in the simple form approximating function was shown.

Вступ. Серед сучасних детекторів іонізуючого випромінювання, принцип роботи яких ґрунтується на різних фізичних явищах, помітне місце займають напівпровідникові детектори (НПД). Цей тип детекторів має малі розміри активної області, можливість інтеграції в єдиний напівпровідниковий чіп з каналом реєстрації зарядового відгуку детектора, найкращі показники селективності при реєстрації іонізуючого випромінювання різних енергій ($\Delta E/E = 0.3 \div 3\%$). Зокрема, особливе зацікавлення викликає використання НПД у сучасних методах діагностики твердого тіла, де інформація про досліджувані об'єкти отримується з аналізу розподілу електронів, емітованих з поверхні зразка. Це такі методи, як EXAFS/XANES спектроскопія [7], оже-електронна спектроскопія і рентгено-фотоелектронна спектроскопія [4], метод стоячих рентгенівських хвиль [3] та інші методи діагностики. Однак на сьогодні в літературі існують лише посилання на успіхи використання НПД у конкретних дослідженнях [1,5] і практично відсутні роботи, що стосуються детального розгляду фізичних процесів переносу і збору заряду в напівпровідниковому детекторі при реєстрації іонізуючого випромінювання. Водночас, для задач спектрометрії рентгенівського та гамма-випромінювання, при аналізі форми ліній в енергетичних спектрах важливим моментом є розгляд всього комплексу процесів, які відбуваються від моменту поглинання кванту до моменту формування імпульсу струму в зовнішньому колі детектора.

Існує значна кількість теоретичних моделей, що з різних позицій намагаються пояснити особливості переносу заряду у твердому тілі, у тому числі і при реєстрації іонізуючого випромінювання [1,2,5]. Нажаль, жодна з них не враховує дифузію нерівноважних електронів та дірок при їх дрейфі в зовнішньому електричному полі та вплив мілких пасток на форму імпульсу струму детектора.

Мета даної роботи – провести аналіз процесу дрейфу носіїв заряду, які виникають при поглинанні рентгенівського кванту в НПД, що містить значну концентрацію мілких пасток, та розрахувати імпульс струму в зовнішньому електричному колі. Вибір рентгенівського випромінювання в якості збуджуючого обґрунтовано домінуванням процесу фотопоглинання при взаємодії рентгенівських квантів з матеріалом НПД та відповідно, створенні в середньому сталої кількості та концентрації нерівноважних електронів і дірок. Також м'яке рентгенівське випромінювання (допорогове) не створює в матеріалі детектора нових стабільних радіаційних дефектів, які можуть бути центрами локалізації або рекомбінації вільних носіїв заряду.

Просторовий розподіл носіїв заряду при дрейфі. Розглянемо випадок, коли в планарному НПД з однорідним електричним полем відбувається поглинання рентгенівського кванту. При цьому початковий розподіл носіїв можна вважати близьким до дельта-функції. Рух носіїв буде складатися з хаотичного дифузійного руху та дрейфу в електричному полі. Рівняння руху для носіїв кожного знаку (вісь ОХ направлена вздовж напрямку електричного поля) буде мати вигляд:

$$\frac{\partial N^{\pm}(x,y,z,t)}{\partial t} = , \quad (1)$$
$$= D^{\pm} \cdot \Delta N^{\pm}(x,y,z,t) \pm \mu^{\pm} \cdot \vec{E}_0 \cdot \vec{\nabla} N^{\pm}(x,y,z,t)$$

де $N^{\pm}(x,y,z,t)$ – просторова концентрація носіїв відповідного знаку; D^{\pm} – коефіцієнти дифузії; μ^{\pm} – рухливості носіїв; \vec{E}_0 – вектор напруженості зовнішнього електричного поля. Для нескінченного кристалу розвязок рівняння дифузії носіїв заряду (1) з початковою умовою у вигляді дельта-функції отримується методом розділення змінних і має наступний вигляд:

$$N^{\pm}(x, y, z, t) = \frac{N_0}{\left(4\pi D^{\pm} \cdot t\right)^{3/2}} \cdot \exp\left(-\frac{\left(x - x_0 \mp \mu^{\pm} E t\right)^2 + \left(y - y_0\right)^2 + \left(z - z_0\right)^2}{4D^{\pm} \cdot t}\right),$$

де (x_0, y_0, z_0) – місце поглинання рентгенівського кванту в кристалі, N_0 – початкова кількість електронів та дірок, що створюються при поглинанні рентгенівського кванту. На практиці напівпровідникові кристали завжди мають обмежені розміри, тому для рівняння відносно координати "Х" необхідно вводити додаткові граничні умови, оскільки заряд, що при дрейфі доходить до електрода зникає із загального розподілу носіїв в детекторі. Таким чином, на межі матеріал детектора – електрод заряду не буде, а отже граничні умови для функцій $N^{\pm}(x,y,z,t)$ будуть мати наступний вигляд:

$$\begin{cases} N^{\pm}(0, y, z, t) = 0 \\ N^{\pm}(d, y, z, t) = 0 \end{cases}$$

Розв'язок рівняння дифузії (1) з цими граничними умовами отримується у наступному вигляді:

$$N^{\pm}(x, y, z, t) = \frac{N_0}{4\pi \cdot D^{\pm} t} \cdot \exp\left(-\frac{(y - y_0)^2 + (z - z_0)^2}{4D^{\pm} \cdot t} + \frac{\mu^{\pm} E_0 \cdot (x - x_0)}{2D^{\pm}}\right) \times$$
(2)

$$\times \frac{2}{d} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(-D^{\pm} t \left[\left(\frac{\pi n}{d}\right)^2 + \left(\frac{\mu^{\pm} E_0}{2D^{\pm}}\right)^2\right]\right] \sin\left(\frac{\pi n x_0}{d}\right) \sin\left(\frac{\pi n x}{d}\right)$$

Отримане співвідношення (2) враховує, що локально згенеровані електрони і дірки внаслідок дифузійного хаотичного руху починають розбігатися відносно центру симетрії свого розподілу, а з іншого боку, оскільки на носії діє сила з боку зовнішнього електричного поля, то всі вони рівномірно з дрейфовою швидкістю $(\mu^{\pm}E_0)$ рухаються до відповідного електроду. Оскільки дифузійний рух носії в вздовж ОУ та OZ не впливає на імпульс струму в зовнішньому електричному колі, то надалі при розрахунках необхідно використовувати лише функцію розподілу концентрації електронів та дірок вздовж осі ОХ:

$$N^{\pm}(x,t) = \frac{N_0}{4\pi \cdot D^{\pm}t} \cdot \exp\left(\frac{\mu^{\pm}E_0 \cdot (x-x_0)}{2D^{\pm}}\right) \times \frac{2}{d} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(-D^{\pm}t \left[\left(\frac{\pi n}{d}\right)^2 + \left(\frac{\mu^{\pm}E_0}{2D^{\pm}}\right)^2\right]\right] \sin\left(\frac{\pi nx_0}{d}\right) \sin\left(\frac{\pi nx}{d}\right),$$
(3)

X

На рис. 1 у відповідності до співвідношення (3) наведено розрахунок просторового розподілу електронів в Si в різні моменти дрейфу в зовнішньому електричному полі для таких параметрів: d = 300 мкм, $x_0 = 150$ мкм, $E_0 = 300$ В/см, T = 300 К, енергія рентгенівського кванту $E_X = 5$ кеВ.





Маючи кінетику просторового розподілу вільних носіїв заряду можна визначити величину імпульса струму в зовнішньому колі напівпровідниеового детектора та врахувати вплив мілких пасток на кінетику просторового розподілу носіїв.

Форма імпульсу струму рентгенопровідності в ідеальному кристалі. Для розрахунку струму в зовнішньому електричному колі *i*(*t*), що створюють при дрейфі до електродів вільні носії заряду (q^{-} і q^{+}) в електричному полі, необхідно застосувати теорему Рамо-Шоклі для точкових зарядів [6, 8]. Оскільки робота електричного поля по переміщенню усіх вільних носіїв визначається як адитивна сума робіт по переміщенню кожного носія, то і величина струму в зовнішньому колі детектора буде визначатися як адитивна сума струмів, які створюють усі вільні носії заряду:

$$i(t) = \frac{q^{-}(t)\mu^{-}E_{0}}{d} + \frac{q^{+}(t)\mu^{+}E_{0}}{d} = , \qquad (4)$$
$$= \frac{eN_{0}E_{0}}{d} \Big[E(t)\mu^{-} + P(t)\mu^{+}\Big]$$

де E(t) та P(t) – частка електронів та дірок, які залишаються вільними в момент часу t і продовжують дрейф:

$$E(t) = \frac{1}{N_0} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \int_{0}^{d} N^-(x, y, z, t) \cdot dx \cdot dy \cdot dz$$

$$P(t) = \frac{1}{N_0} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \int_{0}^{d} N^+(x, y, z, t) \cdot dx \cdot dy \cdot dz$$
(5)

Розрахунок співвідношень (5) значно ускладнюється наявністю нескінченного ряду в точному розв'язку відносно функції концентрації носіїв (3). Детальний аналіз дозволяє запропонувати просту аналітичну залежність для їх апроксимації:

$$E(t) = \frac{1}{1 + \exp\left[\frac{\mu^{-}E_{0} \cdot t - x_{0}}{\sqrt{D^{-}t/2}}\right]};$$

$$P(t) = \frac{1}{1 + \exp\left[\frac{\mu^{+}E_{0} \cdot t - (d - x_{0})}{\sqrt{D^{+}t/2}}\right]}$$

Використання апроксимуючих співвідношень дозволяє значно спростити розрахунки та дає функцію імпульсу струму в аналітичному вигляді, зберігаючи залежність від основних кінетичних параметрів руху носіїв:

$$i(t) = \frac{eN_0E_0}{d} \cdot \frac{\mu^-}{d} + \frac{\mu^+}{1 + \exp\left[\frac{\mu^-E_0 \cdot t - x_0}{\sqrt{0.5D^-t}}\right]} + \frac{\mu^+}{1 + \exp\left[\frac{\mu^+E_0 \cdot t - (d - x_0)}{\sqrt{0.5D^+t}}\right]} = (6)$$
$$= \frac{eN_0E_0}{d} \left[\mu^-E(t) + \mu^+P(t)\right]$$

Таки чином, імпульс струму рентгенопровідності однозначно визначається кількістю згенерованих носіїв та кінетикою просторового розподілу вільних носіїв заряду при їх дифузійно-дрейфовому русі до електричних контактів.

Кінетика дрейфу при локалізації на мілких пастках. В початковий момент часу усі згенеровані носії знаходяться у вільному стані. В процесі їх дифузійнодрейфового руху по кристалічній гратці вони починають локалізуватися на мілких пастках. Через деякий час встановлюється динамічна рівновага між кількістю вільних (*N*[±]) і локалізованих (*N*₀ - *N*[±]) носіїв. Цей процес описується наступним кінетичним рівнянням:

$$\frac{dN^{\pm}(t)}{dt} = -\frac{N^{\pm}(t)}{\tau_{0}^{\pm}} + \frac{N_{0} - N^{\pm}(t)}{\tau_{i}^{\pm}}, \qquad (7)$$

де τ_0^{\pm} – час життя носіїв у вільному стані, τ_i^{\pm} – середній час знаходження носіїв в локалізованому стані на пастках. Немає необхідності розглядати систему кінетичних рівнянь, оскільки за відсутності глибоких пасток та центрів рекомбінації в будь-який момент часу зберігається загальна кількість носіїв заряду. Ймовірності локалізації та делокалізації однакові для всіх носіїв і не залежать від просторових координат, оскільки вважаємо розташування пасток рівномірним по всьому об'єму кристалу. Розв'язок диференційного рівняння (7) має вигляд:

$$N^{\pm}(t) = \frac{N_0}{1 + \frac{\tau_i^{\pm}}{\tau_0^{\mp}}} \cdot \left(1 + \frac{\tau_i^{\pm}}{\tau_0^{\pm}} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0^{\pm}}\right)\right).$$
(8)

Співвідношення (8) визначає кількість вільних носіїв заряду, що знаходяться на стадії дрейфу і створюють електричний струм у зовнішньому колі детектора. Зна-

ючи час дрейфу носіїв
$$\left(T_{drift}^{-}=rac{x_{0}}{\mu^{-}E_{0}};T_{drift}^{+}=rac{d-x_{0}}{\mu^{-}E_{0}}
ight)$$
 в НПД

та середній час життя у вільному стані можна знайти середню кількість послідовних локалізацій *m*₀ при дрейфі:

$$m_0^{\pm} = \frac{T_{drift}^{\pm}}{\tau_0^{\pm}} - 1.$$
 (9)

Середня кількість локалізацій не обов'язково може бути цілим числом, оскільки сам процес локалізації є процесом статистичним. Важливою задачею при розгляді багатократних послідовних локалізацій є визначення ймовірності того, що носії протягом часу дрейфу захопляться на пастки задану кількість разів. При цьому є очевидним, що оскільки кількість локалізацій є цілою дискретною величиною, то відповідно і ймовірність заданої кількості послідовних локалізацій також має залежати лише від цілих аргументів. Врахування того, що густина актів локалізації за одиницю часу *dm/dt = const*, а самі акти локалізації є незалежними між собою процесами, приводить до ймовірності локалізацій у вигляді розподілу Пуассона:

$$F_m(m_0) = \frac{m_0^m}{m!} e^{-m_0} \,. \tag{10}$$

У випадку, коли середня кількість локалізацій $m_0 \ge 20$, застосовуючи співвідношення Стерлінга для факторіалу ($n! \approx (n/e)^n \sqrt{2\pi \cdot n}$), можна від розподілу Пуассона перейти до розподілу Гауса:

$$F_m(m_0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \cdot m_0}} e^{-\frac{(m-m_0)^2}{2m_0}}.$$
 (11)

Це дозволяє визначити кількість носіїв, що локалізуються точно *m* разів протягом дрейфу в НПД: $N_{0m} = N_0 \cdot F_m(m_0)$. А весь процес збору N_0 носіїв на електроді можна розділити на m_{max} незалежних між собою процесів:

$$m_{\max} = m_0 \cdot \left\{ 1 + \sqrt{\frac{1}{m_0} \ln\left(\frac{N_0^2}{2\pi \cdot m_0}\right)} \right\},\,$$

де m_{max} — ціле число, що визначає таку ймовірність процесу кратних локалізацій, в якому бере участь не менше ніж один носій із загальної кількості N_0 . Для кожної *m*-групи носіїв час знаходження в детекторі подовжиться на середнє значення повного часу локалізації на пастках $\Delta t_m = m \cdot \tau_i$. Отже, тривалість імпульсу струму в зовнішньому електричному колі необхідно розглядати протягом часу $T_{drift} + m_{max} \cdot \tau_i$.

Статистичність процесів локалізації носіїв при дрейфі призводить до їх розподілу по кількості локалізацій (10) або (11), а отже дозволяє виділити окремі групи носіїв, що локалізуватимуться задану кількість разів. Для кожної такої групи кінетичне рівняння (7) буде різним. Дійсно, при локалізації на пастках *m* разів середній час знаходження носіїв у вільному стані становитиме вже не τ_0^{\pm} , а $\tau_{0m}^{\pm} = T_{drifl}^{\pm} / (m+1)$. Відповідно, для *m*-групи носіїв кінетичне рівняння (7) набуває вигляду:

$$\frac{dN_{m}^{\pm}(t)}{dt} = -\frac{(m+1)\cdot N_{m}^{\pm}(t)}{T_{drift}^{\pm}} + \frac{N_{0m} - N_{m}^{\pm}(t)}{\tau_{i}^{\pm}}.$$
 (12)

А розв'язок рівняння (12), відповідно:

$$N_m^{\pm}(t) = N_0 \cdot \frac{F_m(m_0)}{1 + \frac{(m+1) \cdot \tau_i^{\pm}}{T_{drift}^{\pm}}} \left(1 + \frac{(m+1) \cdot \tau_i^{\pm}}{T_{drift}^{\pm}} \cdot exp\left[-\frac{(m+1) \cdot t}{T_{drift}^{\pm}}\right]\right) \cdot (13)$$

Співвідношення $N_m^{\pm}(t)/N_0$ визначає повну ймовірність знаходження у вільному стані для групи носіїв, що локалізуються за час дрейфу *m*-разів. Для врахування поступового збору заряду на електродах детектора, а отже і зменшення їх кількості в об'ємі НПД, необхідно врахувати дифузійний характер руху носіїв при дрейфі. Для ідеального НПД внаслідок дифузії носії не одночасно потрапляють до відповідного електроду, а функція розподілу кількості дрейфуючих електронів по часу визначається через інтегрування функції їх просторового розподілу в межах координат НПД (5). Дифузійний рух приводить до дисперсії просторов

вого розподілу носіїв $2D \cdot T_{drift}$, а еквівалентний проміжок часу в зборі носіїв на електроді буде $\sqrt{2DT_{drift}} / \mu E_0$. Саме ця величина і буде фігурувати в E(t) та P(t), бо вона визначає спад імпульсу струму. Також необхідно врахувати, що процес делокалізації носіїв з пасток є процесом статистичним, а імовірність знаходження носія в локалізованому стані визначає ється співвідношенням $w_i(t) = \tau_i^{-1} \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$. Тоді

дисперсія по часу локалізації на одній мілкій пастці:

$$Dis(t) = \frac{1}{\tau_i} \int_0^\infty (t - \tau_i)^2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) dt = \tau_i^2.$$
 (14)

Оскільки розглядається процес послідовних *m* локалізацій при дрейфі, то відповідно, повна дисперсія для *m* незалежних між собою процесів локалізацій

становитиме $Dis\left(\sum_{j}^{m} t_{j}\right) = \sum_{j}^{m} Dis(t_{j}) = m \cdot \tau_{i}^{2}$. Також необхідно врахувати затримку в часі приходу цих N_{m} носіїв на електрод $\left(T_{drift} + m \cdot \tau_{i}\right)$. Отже, отримуємо, що при локалізації носіїв на мілких пастках співвідношення E(t) та P(t) для електронів та дірок зміняться наступним чином:

$$E_{m}(t, x_{0}, m) = \left(1 + \exp\left[\frac{t - m \cdot \tau_{i}^{-} - T_{drift}^{-}}{\sqrt{\frac{D^{-} \cdot T_{drift}^{-}}{2(\mu^{-} \cdot E_{0})^{2}}} + m \cdot (\tau_{i}^{-})^{2}}\right]\right)^{-1},$$

$$P_{m}(t, x_{0}, m) = \left(1 + \exp\left[\frac{t - m \cdot \tau_{i}^{+} - T_{drift}^{+}}{\sqrt{\frac{D^{+} \cdot T_{drift}^{+}}{2(\mu^{+} \cdot E_{0})^{2}}} + m \cdot (\tau_{i}^{+})^{2}}\right]\right)^{-1} (15)$$

Додавання по усім *m*-групам носіїв дозволяє встановити загальну їх кількість в напівпровіднику в будь-який момент часу дрейфу, а отже і розрахувати величину імпульсу струму рентгенопровідності, що вони створюють. Для електронів (аналогічно для дірок) отримуємо:

$$N^{-}(t) = N_{0} \cdot \sum_{m} F_{m}(m_{0}) \left(\frac{E_{m}(t, x_{0}, m)}{1 + \frac{(m+1) \cdot \tau_{i}^{-}}{T_{drift}^{-}}} \left(1 + \frac{(m+1) \cdot \tau_{i}^{-}}{T_{drift}^{-}} e^{\left(-\frac{(m+1) \cdot t}{T_{drift}}\right)} \right) \right)$$
(16)

Співвідношення (16) можна отримати в більш простому вигляді зваживши, що фактично при додаванні або інтегруванні по *m* відбувається усереднення, в першу чергу, функцій $E_m(t,x_0,m)$ або $P_m(t,x_0,m)$ по *m* з деякими ваговими множниками, які визначаються розподілом Пуассона або Гауса. В цьому

випадку можна скористатися тим же методом, який застосовували для дифузії та розполілу по часу

застосовували для дифузії та розподілу по часу локалізації на мілких пастках. Оскільки дисперсія по значенням *m* визначається як $\sqrt{m_0}$, то інтегрування по *m* можна замінити середньою функцією

 $E(t, x_0, m_0)$, або $P(t, x_0, m_0)$ зі збільшеною дисперсією по часу. А потім перевірити одержане аналітичне співвідношення з розрахованими залежностями:

$$N^{\pm}(t,\tau_{i}^{\pm},\tau_{0}^{\pm}) = \frac{N_{0}\cdot\left(1+\frac{\tau_{i}^{\pm}}{\tau_{0}^{\pm}}\exp\left(-\frac{t}{\tau_{0}^{\pm}}\right)\right)}{\left(1+\frac{\tau_{i}^{\pm}}{\tau_{0}^{\pm}}\right)\left(1+\exp\left[\frac{t-m_{0}\cdot\tau_{i}^{\pm}-T_{drift}^{\pm}}{\sqrt{\frac{D^{\pm}\cdot T_{drift}^{\pm}}{2\left(\mu^{\pm}\cdot E_{0}\right)^{2}}}+m_{0}\cdot\left(\tau_{i}^{\pm}\right)^{2}}\right]\right)}$$
(17)

Очевидно, що найбільша похибка буде при малих значеннях m_0 . На рис. 2 наведено порівняння розрахованих точних функцій $N^-(t)$ та їх апроксимацій для наступних параметрів: d = 300 мкм, $x_0 = 150$ мкм, $E_0 = 300$ В/см, $\tau_i^- = 10$ нс, $T_{drift}^- = 35$ нс.





Імпульс струму в зовнішньому електричному колі напівпровідника буде визначатися у відповідності до (6) та залежатиме від параметрів пасток:

$$i(t) = \frac{eE_0}{d} \left(\mu^- \cdot N^- \left(t, \tau_i^-, \tau_0^- \right) + \mu^+ \cdot N^+ \left(t, \tau_i^+, \tau_0^+ \right) \right)$$
(18)

В граничному наближенні малої концентрації пасток, коли $m_0^{\pm} \rightarrow 0$ співвідношення (18) асимптотично наближається до функції імпульсу струму (6) і відповідає дрейфу носіїв в ідеальному кристалі. На рис. З наведено розрахунок електронної компоненти імпульсу струму в Si та ZnSe при наявності мілких пасток.



Рис. 3. Імпульс струму електронної компоненти в Si – 1 та ZnSe – 2 (d = 300 мкм, x_0 = 150 мкм, E_0 = 300 В/см, $\tau_i^- = \tau_0^-$ = 10 нс, E_X = 5 кеВ)

Наявність декількох типів мілких пасток. В реальних напівпровідникових матеріалах будуть існувати пастки декількох типів, а тому проведений розгляд необхідно розширити і для такого випадку. Наявність декількох типів пасток змінить параметри дифузійнодрейфового руху носіїв μ^{\pm} та D^{\pm} за рахунок зміни довжини вільного пробігу носіїв між двома послідовними актами розсіювання. Для довжини вільного пробігу необхідно використовувати співвідношення $l^{-1} = l_0^{-1} + \sum l_i^{-1}$. Також зміниться такий важливий параметр руху вільних носіїв, як середній час життя у вільному стані $au_0^{\pm} = \left(u^{\pm} \sum_i \sigma_i v_i \right)$, де u^{\pm} – теплові швидкості вільних носіїв, σ_i – перерізи локалізації на різні типи пасток, v, – відповідні концентрації пасток. Додавання в цьому співвідношенні проходить по всім типам пасток для електронів, або ж дірок. В цьому випадку вільні носії можуть локалізуватися різну кількість разів на різних пастках де будуть перебувати протягом різного часу. Для визначення середньої кількості локалізацій на пастці і-типу необхідно визначити середню кількість пасток, що потрапляють в об'єм переміщення носія з площею перерізу σ_i та

довжиною $\left(u^{\pm}T_{drift}^{\pm}\right)$:

$$m_{0i} = \sigma_i v_i T_{drift} u \neq \frac{T_{drift}}{\tau_0}$$
(19)

Якщо загальна кількість локалізацій досить значна $M_{_0} = \sum m_{_{0i}} >> 1$, то всю сукупність пасток можна замі-

нити на одну ефективну, що буде характеризуватися усередненим значенням часу локалізації та середньої кількості послідовних локалізацій при дрейфі:

$$\tau_i^* = \frac{\sum_i m_{0i} \cdot \tau_i}{M_0} = \frac{\sum_i \sigma_i v_i \tau_i}{\sum_i \sigma_i v_i}, \qquad m_0^* = T_{drif} u \cdot \sum_i \sigma_i v_i$$

Використовуючи такі ефективні параметри у співвідношенні (6), отримаємо середньостатистичну форму імпульса струму в напівпровіднику при наявності декількох типів мілких пасток.

Таким чином, одержали систему розрахунку імпульсу струму в зовнішньому електричному колі, який виникає при поглинанні одного рентгенівського кванту в напівпровідниковому детекторі, та враховує проміжні локалізації вільних носіїв заряду на мілких пастках в процесі їх дифузійно-дрейфового руху.

Висновки. Отримані співвідношення дозволяють робити кількісний розрахунок зарядового відгуку напівпровідникових детекторів в залежності від харак-

УДК 621.378.325

теристик вибраного матеріалу, параметрів випромінювання та величини зовнішнього електричного поля. Врахування локалізацій на мілких пастках (або ж глибоких, що визначається лише величиною часу життя в локалізованому стані τ_i^{\pm}) є актуальним для теоретичного аналізу процесів переносу заряду в планарних детекторах значної товщини (d = 1–5 мм) та при використанні широкозонних напівпровідників невисокої чистоти, що є наслідком певних технологічних обмежень їх отримання.

Робота виконана при фінансовій підтримці Державного фонду фундаментальних досліджень України (проект Ф25.4/138).

1. Акимов Ю.К., Игнатьев О.В., Калинин А.И. Полупроводниковые детекторы в экспериментальной физике. – М.: Энергоатом интас, 1989. – 433 с. 2. Тагиев Б.Г., Касумов У.Ф., Мусаева Н.Н., Джаббаров Р.Б. Анализ механизмов переноса заряда в монокристаллах Ca₄Ga₂S₇:Eu³⁺, определяющих форму вольт-амперных характеристик // ФПП. – 2005. – Т. 39, В. 5. – С. 403–408. 3. Коеальчук М.В., Кон В.Г. Рентгеновские стоячие волны – новый метод исследования структуры кристаллов // УФН. – 1986. – Т. 149, №1. – С. 69–103. 4. Briggs D. Practical Surface Analysis: Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy // М.Р. Seah. – John Wiley & Sons, 1990. – 674 р. 5. Eisen Y., Shor A. CdTe and CdZnTe materials for room-temperature X-ray and gamma ray detectors // Journal of Crystal Growth. – 1998. – Vol. 184. – Р. 1302–1312. 6. Ramo S. Currents induced by electron motion // Proc. of the I.R.E. – 1939. – Vol. 27. – P.584. 7. Koningsberger D.C. X-ray Absorption – Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES // R. Prins. – John Wiley & Sons, 1988. – 688 р. 8. Shockley W. Currents to conductors induced by a moving point charge // J.Appl. Phys. – 1938. – Vol. 9. – P. 635.

Надійшла до редколегії 26.11.10

I. Захарченко, канд. фіз.-мат. наук, ст. наук.співр., О. Крилов, студ., С. Неділько, д-р фіз.-мат. наук., с. н. с., Л. Робур, канд. фіз.-мат. наук, доц.

ОПТИМІЗАЦІЯ ПАРАМЕТРІВ ЛАЗЕРІВ З РЕЗОНАТОРОМ НА БАЗІ ІНТЕРФЕРОМЕТРА САНЬЯКА

Представлені результати експериментальних досліджень енергетичних та просторових параметрів лазерних імпульсів лазерів з модульованою добротністю резонатора на базі інтерферометра Саньяка.

Presented results of pulse energetic and spatial parameters experimental research for lasers with modulated quality, based on Sagnac interferometer resonator.

Пріоритетними завданнями розвитку лазерної техніки є підвищення потужності, зменшення тривалості імпульсу, покращення просторових характеристик та зменшення кутової розбіжності лазерного випромінювання. Не зважаючи на великий обсяг проведених робіт, актуальність даних досліджень залишається високою. Основна причина – необхідність подальшого вдосконалення методів просторової та часової селекції випромінювання.

Найбільш поширеними в наносекундній імпульсній лазерній техніці є резонатори з плоскими дзеркалами та діафрагмою, що розміщується в середині резонатора. Однак, застосування жорстких діафрагм в резонаторі призводить до примусового зменшення об'єму моди випромінювання та, як наслідок, до погіршення стабільності і зменшення енергії на виході з лазера.

Застосування як просторового селектора, так званих "м'яких" діафрагм [3] дозволяє дещо збільшити знімання енергії з активних елементів лазерів, але не покращує стабільність енергії вихідного випромінювання.

Іншим відомим та широковживаним методом селекції є використання нестійких резонаторів. Теорію таких резонаторів достатньо добре розроблено [11, 13, 14], однак, до нинішнього часу переваги таких резонаторів є спірними. Суть проблеми заключається в наступному: резонатори з плоскими дзеркалами при всій своїй простоті та відносно незначної чутливості до якості оптичних елементів, мають малий об'єм моди та, як наслідок, малу вихідну енергію випромінювання [11]. Для нестійких резонаторів, поле розосереджується від оптичної осі до границі бокової поверхні активного середовища [13, 14], і в режимі однієї поперечної моди можна отримати великий модовий об'єм, а отже, і високу вихідну енергію. Але нестійкі резонатори значно більш критичні до якості оптичних елементів (а активного середовища особливо) та різних втрат, що ускладнює процес створення лазерів на базі таких резонаторів. Крім того, для нестійких резонаторів досить складно забезпечити генерацію на найнижчій поперечній моді.

© Захарченко I., Крилов О., Неділько С., Робур Л., 2011

В роботі [10] описана досить сучасна методика отримання одномодового та одночастотного випромінювання в наносекундних лазерах. Основним засобом, що застосовується в цій системі є спеціальне дзеркало з гаусовим профілем коефіцієнта відбивання та додатковий одночастотний лазер, що проводить "вприскування" випромінювання в основний резонатор. Застосування такого дзеркала дозволяє лазеру генерувати на $\mathrm{TEM}_{\mathrm{00q}}$ моді шляхом внесення втрат (по відбиванню) для мод вищих порядків, а застосування затравочного лазера здійснює примусову зав'язку одночастотного режиму генерації. Разом із тим застосування такої методики ускладнено необхідністю використання дорогих комплектуючих елементів і, як наслідок, ці лазери не набули практичного поширення.

Ряд згаданих питань може вирішити використання інтерферометра Саньяка (IC) як розподіленого дзеркала резонатора імпульсних лазерів. Такий підхід дозволяє отримати генерацію найнижчої поперечної моди без внесення додаткових елементів селекції. Поперечний профіль вихідного пучка при цьому має гаусову форму з достовірністю не гірше 0,99, а генерація на TEM_{00q} моді можлива для активних середовищ різної оптичної якості. Застосування інтерферометра Саньяка значно покращує стабільність енергії генерації, стабільність тривалості та інші вихідні параметри наносекундних імпульсних лазерів і лазерів ультракоротких імпульсів (УКІ).

Було показано [1, 5, 6, 7], що застосування інтерферометра Саньяка (IC) як кінцевого відбивача резонатора лазера, вперше запропоноване в [12], забезпечує стійку роботу лазера на найнижчій поперечній моді без додаткової селекції при відносно високому рівні заповнення випромінюванням активного середовища. Крім того, резонатор з IC в режимі вільної генерації забезпечує утримання найнижчої поперечної моди (TEM_{00q}) з активними елементами досить низької оптичної якості [1].

Найбільш простим вирішенням проблеми імпульсного одночастотного лазера є використання пасивної модуляції добротності (ПМД). Дійсно, ще в кінці 60-х років було виявлено [4], що лазер з пасивною модуляцією добротності, наприклад за допомогою фототропних барвників, при використанні елементу, що передує селектору аксіальних мод (вихідне дзеркало у вигляді інтерферометру) забезпечує генерацію випромінювання з однією аксіальною модою та шириною спектра, обернено пропорційній довжині імпульсу генерації.

В роботі [2] теоретично досліджували питання оптимізації енергетичних параметрів лазерних імпульсів наносекундної тривалості, а саме: енергії генерації, тривалості імпульсів, пікової потужності імпульсів генерації. При цьому були розглянуті лише лінійні резонатори з плоскими кінцевими дзеркалами. Найважливішим висновком цих робіт є наявність екстремумів для енергії, тривалості та пікової потужності лазерних імпульсів в залежності від параметрів резонатора. Крім того, ключовою величиною для оцінки параметрів резонатора, які реалізують екстремуми вказаних енергетичних параметрів лазерних імпульсів, є величина внутрішніх втрат лазерного резонатора, яка потребує надійного експериментального визначення. Не виключено, що з цієї причини систематичні експериментальні дослідження питання оптимізації енергетичних параметрів лазерних імпульсів наносекундної тривалості для лінійних резонаторів нам не відомі. Тим більше це стосується імпульсних лазерів з модульованою добротністю резонатора на базі інтерферометра Саньяка.



Рис. 1. Залежність енергії генерації лазерного імпульсу від довжини периметра резонатора при пасивній модуляції добротності

В роботі досліджували енергетичні характеристики випромінювання лазера з ПМД в залежності від довжини периметра кільця ІС. Експериментально фіксували величину початкового пропускання T₀ пасивного модулятора добротності на основі плівок поліуретану з відповідним барвником, що дорівнювала величині T₀ = 49 %. При цьому величина енергії накачування активного середовища, що перевищувала поріг генерації лазера при зміні периметра кільця інтерферометра Саньяка від L = 800 мм до L = 1000 мм змінювалась незначно: в межах 32 - 37 Дж. На рис. 1 показано залежність енергії генерації лазерного імпульсу від довжини L периметра кільця ІС, а на рис. 2 – залежність тривалості імпульсу генерації від L. На рис 3 показано відпали лазерних імпульсів на фотопапері, які демонструють якість просторового розподілу енергії випромінювання у поперечному перерізі лазерного пучка. Ці відпали свідчать про те, що генерація лазера відбувається на найнижчій поперечній моді ТЕМ_{00а}.





В даних експериментах кількість повздовжніх мод генерації не контролювалась. Звертає на себе увагу той факт, що залежність енергії генерації від периметра кільця IC має екстремум при L = 875 мм. На нашу думку, це пов'язано з тим, що коефіцієнт відбивання вихідного дзеркала випадковим чином виявився близьким до оптимального, як це показано в роботі [2].

Експериментальні дані якісно співпадають для аналогічних результатів у випадку лінійних лазерних резонаторів.



Рис. 3. Відпали лазерних імпульсів на фотопапері в залежності від початкового пропускання ПМД (стовбець) та від довжини кільця IC (рядок)

Була досліджена залежність енергетичних параметрів лазерних імпульсів від початкового T₀ пропускання ПМД для різних типів пасивних модуляторів.

Разом з пошуком нових ефективних активних середовищ продовжуються роботи із удосконалення пасивних лазерних модуляторів добротності резонатора. Останнім часом з'явились нові типи ПМД, такі як: алюмо-ітрієвий гранат, активований іонами Cr⁴⁺; барвники в полімерній матриці; кристали LiF, активо-

вані F_2^- -центрами забарвлення, які виникають в кристалах LiF при опроміненні їх випромінюванням радіоактивних атомів Co^{60} .





Досліджена залежність енергетичних характеристик лазерного імпульсу від довжини резонатора Особливу увагу із цього ряду викликає ПМД на основі полімерної плівки, позначений № 1. Це зумовлено тим, що цей модулятор добротності є тонкою плівкою ~ 10–50 мкм, яку нанесено на підкладку із скла або кварцу, товщиною ~ 500 мкм. Мала товщина пасивного модулятора забезпечує малі величини неактивного (нерезонансного) поглинання в такій системі. Прозорість плівки в видимій області діапазону спектра суттєво полегшує юстування лазерного резонатора на відміну від ПМД на основі LiF-F⁻₂ і АИГ-Cr⁴⁺, які у видимій області спектра непрозорі. Крім того, мала товщина ПМД призводить до малих величин залишкового поглинання для модулятора в просвітленому стані, які визначають величину γ_0 [2] внутрішніх втрат лазера з

пасивною модуляцією добротності.

Експериментальні результати залежності енергії та тривалості лазерних імпульсів від величини початкового пропускання Т₀ пасивного лазерного модулятора на основі ПМД № 1 показано на рис. 4 та рис. 5.

В експерименті вимірювалась величина T_0 початкового пропускання ПМД, а також величина $E_{\rm H}$ енергії накачування активного середовища для величини T_0 при фіксованому значенні величини коефіцієнта відбивання R_1 вихідного дзеркала, який у даному випадку був рівний 48 %.

Як видно з рис. 4 і рис. 5 умови, близькі до оптимальних умов генерації лазерних імпульсів при заданому $R_1 = 48$ %, задаються параметрами $T_0 = 60$ % і $E_{\rm H} = 30$ Дж. Про це свідчить зменшення залежностей енергії генерації $E_{\rm r}$ від T_0 , а також тривалості Δt від T_0 , що знаходиться у повній відповідності з теоретичними розрахунками [2]. Звідси випливає ще один важливий висновок. Для оптимізації параметрів лазера при інших початкових пропусканнях ПМД, необхідно підбирати величину коефіцієнта відбивання R_1 вихідного дзеркала резонатора.



Рис. 5. Залежність тривалості генерації лазерного імпульсу від початкового пропускання модулятора №1

при активній модуляції добротності, що показано на рис. 6 та рис. 7.





Наявність екстремуму в залежності енергії генерації від довжини периметра кільця ІС при фіксованому коефіцієнті відбивання вихідного дзеркала (рис. 6) свідчить про те, що сукупність параметрів кільцевого резонатора, як то: коефіцієнт заповнення резонатора активним середовищем, коефіцієнт відбивання вихідного дзеркала та величина внутрішніх нерезонансних втрат резонатора реалізують максимум енергії генерації при довжині периметра кільця резонатора, що дорівнює 925 мм при фіксованій енергії накачування 75 Дж.

Відсутність натяку на екстремум величини тривалості імпульсу генерації від довжини кільця ІС свідчить про те, що сукупність параметрів кільцевого резонатора при фіксованій енергії накачування активного середовища далекі від оптимальних.

Нижче приведені порівняльні характеристики енергетичних параметрів лазерних імпульсів для різних типів модуляторів добротності при фіксованій довжині периметра інтерферометра Саньяка.

В таблиці приведені енергетичні параметри лазерних імпульсів при довжині кільця інтерферометра Саньяка 1000 мм.

| Тип модулятора | Е _н , Дж | Е _г , мДж | Δ t, нс |
|---|---------------------|----------------------|----------------|
| ПМД №1 (T₀ = 30%) | 42 | 37 | 24 |
| $LiF:F_2^{-1}(T_0 = 22\%)$ | 75 | 14 | 22 |
| АИГ:Cr ⁴⁺ (T ₀ = 40%) | 28 | 24 | 32 |
| АМД (DKDP) | 75 | 41 | 25 |

Із пасивних модуляторів добротності резонатора на базі IC найкращі енергетичні параметри лазерних імпульсів, як видно із таблиці, отримані для ПМД № 1. При цьому варто відмітити стабільність відтворення параметрів лазерних імпульсів, а також високу якість лазерного пучка, що проявляється в однорідності радіального розподілу інтенсивності випромінювання в поперечному перерізі лазерного пучка.

Енергетичні параметри лазерних імпульсів при використанні активної модуляції, взагалі то, перевищують аналогічні параметри для пасивних модуляторах добротності, але, по-перше звертає на себе увагу висока енергія накачування активного середовища, а по-



Рис. 7. Залежність тривалості імпульсу генерації лазера від довжини периметра кільця інтерферометра Саньяка при активній модуляції добротності резонатора та фіксованій енергії накачування

друге спостерігається дуже висока (порядку 20 %) нестабільність енергії лазерних імпульсів. Крім того, спостерігається "порізаність", як правило, форми цих імпульсів. А це є значним недоліком при оцінці якості лазерних імпульсів. В літературі з лазерної техніки, де розглянуто параметри імпульсів при активній модуляції добротності [8, 9], стверджується, що параметри лазерних імпульсів при використанні АМД більш стабільні ніж при використанні ПМД. Ми цього не спостерігали в нашій роботі. Можливо, це пов'язано з тією обставиною, що нами був використаний для активної модуляції резонатора неякісний кристал DKDP.

Висновки. Дослідження параметрів лазера на твердому тілі з резонатором на базі інтерферометра Саньяка показали:

Якісну відповідність одержаних енергетичних параметрів імпульсів випромінювання результатам теоретичних розрахунків цих параметрів виконаних для випадку лінійних резонаторів, як у випадку пасивної модуляції добротності резонатора, так і у випадку активної модуляції.

Зокрема, залежність енергетичних параметрів лазерних імпульсів від довжини кільця інтерферометра Саньяка є аналогічною подібній залежності для лінійних резонаторів з плоскими кінцевими дзеркалами. Вимірювання параметра внутрішніх втрат лазера дозволяє перейти від якісного до кількісного порівняння результатів теорії та експерименту. А це, в свою чергу, потребує надійного експериментального методу визначення внутрішніх нерезонансних втрат лазера.

Встановлено, що використання IC дозволяє отримати суттєво більш стабільну генерацію на найнижчій поперечній моді та при жорстко нав'язаній лінійній поляризації (s-компонента) випромінювання без використання додаткових поляризаційних елементів.

З'ясовано, що серед досліджених модуляторів добротності найбільшу ефективність та стабільність енергетичних параметрів лазерних імпульсів забезпечують пасивні модулятори типу полімерної плівки.

^{1.} Безродный В.И., Прохоренко В.И., Тихонов Е.А. и др. Лазеры УКИ на основе интерферометра Саньяка // Квантовая электроника (межвед. сб), 1988, Вып. 35, с. 6–13. 2. Білий М.У., Захарченко І.Б., Кошеленко В.П., Охріменко Б.А. Оптимізація енергетичних параметрів пазера при пасивній модуляції добротності резонатора.//Укр. фіз.журн., 2001, т. 46, № 11, с. 1133–1138. З. Красюк И.К., Лукишова С.Г., Марео-

лин Д.М., Пашинин П.П., Прохоров А.М., Терехов В.Д. Мягкие диафрагмы на основе наведенного поглощения. // Письма в ЖТФ, 1976, т. 2, вып.13, с. 577–581. 4. Микаэлян А.Л., Тер-Микаэлян М.Л., Туров Ю.Г. Оптические генераторы на твердом теле // М.: Сов.радио, 1967, 384 с. 5. Прохоренко В.И., Суровцев Д.В., Тихонов Е.А., Яцкив Д.Я. Стабильный импульсный пикосекундный лазер на ГСГГ:Nd с резонатором на основе интерферометром Саньяка // Квантовая электроника, 1990, т. 17, №3, с. 288–290. 6. Прохоренко В.И., Тихонов Е.А., Яцкив Д.Я. Оптические свойства некоторых модификаций интерферометра Саньяка // ЖТФ, 1991, т. 61, №4, с. 72–79. 7. Прохоренко В.И., Тихонов Е.А., Яцкыв Д.Я., Бушмакин Е.Н. Генерация УКИ в лазере на АИГ:Nd в схеме со сталкивающимися импульсами// Квантовая электроника, 1987, т. 14, № 4, с. 804–810. 8. Тарасов Л.В. Физика процессов в генераторах когерентного оптического излучения. // М.: Радио и связь, 1981, 440 с.

УДК 535.373

9. Ханин Я.И. Динамика квантовых генераторов. // М.:Радио, 1975, 496 с. 10. *Caparara A., Bucher S., Aubert R.* Injection seeding of a Nd:YAG laser utilizing a radially variable reflectivity output coupler// Proceeding of SPIE, OE'LASE 88, Jan. 1988., v. 912, p. 21–31. 11. *Fox A.G., Li T.* Resonant modes in a maser interfarometer // Bell. Syst. Tech. Journ., 1961, v. 40, p. 453–465. 12. *Siegman A.E.* An antiresonant ring interferometer for coupled laser cavity, laser output coupling, mode – locking, cavity damping // IEEE J. of Quantum Electronics, 1973, QE-9, № 2, p. 247–250. 13. *Siegman A.E.* Stabilizing output with unstable resonators // Laser Focus, 1971, v. 7, p. 42–44. 14. *Siegman A.E.* Unstable optical resonators for laser application // Proc. IEEE, 1965, v. 53, p. 277–285.

Надійшла до редколегії 23.04.10

С. Левченко, асп., В. Ящук, д-р. фіз.-мат. наук, проф., В. Кудря, канд. фіз.-мат. наук., З. Ткачук, канд. хім. наук, В. Мельник, д-р. фіз.-мат. наук, В. Воробйов, інж.

АУТОЛЮМІНЕСНЦЕНЦІЯ СИСТЕМ РИБОНУКЛЕОТИДІВ З БІЛКАМИ ТА МОЖЛИВІСТЬ СПЕКТРАЛЬНОГО ТЕСТУВАННЯ ЇХ ВЗАЄМОДІЇ

Розглянуто можливість застосування методу низькотемпературної аутолюмінесценції для спектрального тестування наявності зв'язування між біологічними об'єктами. На основі спектрів поглинання та люмінесценції визначено положення перших збуджених синглетних та триплетних електронних рівнів рибонуклеотидів та електронмістких амінокислот. Отримано спектральні докази зв'язування молекул альбуміну людини з молекулами олігоаденілату.

Possibility of application of a low-temperature autoluminescence method for the detection the presence of binding between biological objects was studied. The position of the first excited singlet and triplet electronic energy levels of the ribonucleotides and π -electron containing amino acids were estimated using absorption and luminescence spectra. The spectral evidences of the binding between human albumin molecules and oligoadenilate molecules were obtained.

Вступ. Ряд біологічних об'єктів, зокрема нуклеїнові кислоти (НК) та білки, містять в своєму складі ароматичні складові, тобто такі компоненти в яких наявні спряжені п-електронні зв'язки. Біологічні сполуки належать до класу біополімерів в яких пелектронні зв'язки локалізовані в окремих хромофорних групах. В РНК та ДНК – це нуклеотиди, в білках – ароматичні амінокислоти (триптофан, тирозин та фенілаланін). Саме ці п-електронмісткі сполуки в основному і визначають спектральні властивості біополімерів та роблять їх зручними об'єктами для дослідження спектральними методами.

Спектральні методи є дуже чутливими, експресними та інформативними. Так дослідження поглинання та випромінювання дають змогу оцінити положення перших збуджених електронних синглетних та триплетних рівнів, зробити висновки про можливі процеси передачі енергії електронного збудження в макромолекулах та між парами молекул. З іншого боку, спектральні методи дозволяють встановлювати наявність зв'язування між компонентами біологічної системи, зокрема зв'язування білків з РНК та олігоаденілатами. Для більшості білків є характерною наявність власної люмінесценції, яка є дуже чутливою до зміни оточуючого середовища. Таким чином, за змінами в спектрах люмінесценції можна отримати дані щодо зв'язування білків з НК. Причому відносна безструктурність спектрів власної флюоресценції як білків так і НК, а також їх накладання в досліджуваному діапазоні, значно ускладнює встановлення в спектрах зв'язування НК з білками. На противагу флюоресценції, спектри фосфоресцентного випромінювання РНК та білків, характеризується наявністю більш чіткої структури та наявныстю максимумів характерних лише для НК, а точніше для одного з нуклеотидів – АМФ, що входять до її складу. Так наприклад підтвердженням факту зв'язування РНК з альбуміном, виступає наявність в спектрах фосфоресценції системи РНКальбумін максимуму на довжині хвилі 387 нм, що якраз і є характерним для макромолекули РНК. Вище вказані факти свідчать про значні переваги при використанні саме спектрів фосфоресценції для детектування РНК в білковому оточенні.

Метою даної роботи було вивчення спектральних проявів зв'язування альбуміну з олігоаденілатом та нуклеїновими кислотами (НК) за результатами досліджень аутолюмінесценції білків та рибонуклеотидів.

Матеріали та методи. Білок людський альбумін, п-електронмісткі амінокислоти (тирозин, триптофан та фенілаланін), оліго РНК, тРНК, олігоаленілат 2'5'А₃ та модельні сполуки, а саме моно фосфати 5'-аденозин (рАМФ), 5'-гуанозин (рГМФ), 5'-урідін (рУМФ) та 5'-цитидін (рЦМФ) надані Інститутом Молекулярної Біології та Генетики (ІМБГ) НАНУ. Вимірювання спектрів люмінесценції проводилися на спектрофлюориметрі Ніtachi МРF-4, вимірювання спектрів поглинання проводилося на спектрофотометрі Specord UV-VIS. Спектральні вимірювання проводилися при T = 4.2K, 77К та кімнатній температурі.

Результати та обговорення. Розглянемо детальніше будову, функції та основні спектральні властивості досліджуваних речовин.

А) Нуклеїнові кислоти належать до біополімерів – високомолекулярних природних сполук, що лежать в основі всіх живих організмів та відіграють важливу роль в забезпеченні їх життєдіяльності. До біополімерів також належать білки та полісахариди. В той час як ДНК грає роль своєрідного сховища генетичної інформації в клітині, РНК забезпечує транскрипцію та трансляцію цієї інформації. Виключенням є деякі віруси в яких вся інформація міститься саме в РНК. Принциповою різницею між ДНК та РНК є наявність в РНК додаткової гідроксильної групи –ОН в положенні 2' цукрового кільця. Наявність цієї групи з одного боку робить РНК хімічно менш стабільною та зменшує кількість можливих конформацій спіралі, порівняно з ДНК, а з іншого боку стабілізує третинну структуру РНК. РНК складається з 4 типів нуклеотидів (аденозинмонофосфати, гуанозинмонофосфати, цитидінмонофосфати та урідінмонофосфати), які зв'язуючись між собою утворюють полінуклеотидний ланцюг [7]. Кожен нуклеотид складається з азотистої основи, рибози та залишку фосфатної кислоти [7].

Центрами відповідальними за оптичне поглинання, флюоресценцію та фосфоресценціюв біологічних молекулах є групи, що містять так звані π -електронмісткі системи. В білках такі групи знаходяться в амінокислотах – фенілаланіні, тирозині та триптофані, в ДНК та РНК вони знаходяться в азотистих основах.

Спектри поглинання та флюоресценції дають можливість отримати положення електронних рівнів основного та збудженого станів. Положення перших збуджених синглетних електронних рівнів визначається на перетині довгохвильового краю кривої спектру поглинання та короткохвильового краю кривої знормованого спектру флюоресценції (рис. 1). Діаграма отриманих енергетичних рівнів наведена на рис. 3.



Рис. 1. Нормовані спектри поглинання та флюоресценції нуклеотидів: а – АМФ, б – УМФ, в – ГМФ, г – ЦМФ

Спектри фосфоресценції сполук, що моделюють окремі ланки РНК (рис. 2) дають можливість оцінити положення їх триплетних рівнів за краєм кривої спектру фосфоресценції. Особливо чітким край спектру фосфоресценції є при низьких температурах (в даній роботі положення триплетних рівнів визначали при T = 4.2K). Енергетична діаграма триплетних рівнів модельних сполук (отримані за спектрами фосфоресценції) наведено на рис. 3. Видно, що найнижчий триплетний рівень, як і у випадку ДНК [1, 4], належить аденіновій ланці. Однак на відміну від спектрів фосфоресценції ДНК, що пов'язані з пасткою АТ [7], фосфоресценція РНК, зумовлена з випромінюванням аденінової ланки [3].





Рис. 2. Спектри фосфоресценції рибонуклеотидів при Т = 4.2 К та 77 К. Водний розчин, λ _{зб} = 260 нм, С_{гамр,гСМР,гСМР,гСМР,гСМР} = 0.34 mM





Б) Унікальна послідовності амінокислот визначає тип білка та його функції в організмі. Досліджуваний Людський альбумін (ЛА) складається з 585 амінокислот. Причому, кожна молекула ЛА містить ароматичні амінокислоти: 1 триптофан, 31 фенілаланін та 18 тирозинів [5]. Незважаючи на те, що з усіх ароматичних амінокислот Тгр міститься в білках в найменші кількості, саме він є основним хромофором. Енергія яка поглинається Туг чи Рhе як правило переноситься до Trp. Спектри люмінесценції Trp дуже чутливі до зміни його оточуючого середовища, що дає можливість за змінами в спектрах люмінесценції досліджувати зв'язування білків безпосередньо з РНК та її короткими фрагментами [4].

Використовуючи методику описану вище за спектрами флюоресценції та поглинання (рис. 4) було оцінено положення перших збуджених синглетних рівнів. Вони подані на рис. 5 і близькі до виміряних в [4].



Рис. 4. Нормовані спектри поглинання та флюоресценції амінокислот: а – фенілаланін, б – тирозин





Рис. 4. Нормовані спектри поглинання та флюоресценції амінокислот: в – триптофан

Зі спектрів фосфоресценції амінокислот оцінено положення їхніх триплетних рівнів T_1 (рис. 5).

Спектральні дані отримані в пунктах А) та Б) дозволяють побудувати діаграму енергетичних рівнів





З даної енергетичної діаграми випливає, що зв'язування оліго та полінуклеотидів з альбуміном може проявитися в перенесенні енергії електронного збудження на триптофан. Як результат повинно спостерігатися домінування флюоресенції та фосфоресценції триптофану в бінарних розчинах альбумін-РНК/олігонуклеотид. Однак, в спектрах флюоресценції та фосфоресценції при низьких температурах (77–4.2К) при збудженні довжиною хвилі 260 нм проявляються обидві компоненти розчинів. Лише при кімнатній температурі дійсно проявляється в основному флюоресценція триптофану. Але це пов'язано з тим, що нуклеотиди при кімнатній температурі мають дуже низький (10⁻⁵) квантовий вихід флюоресценції [8].

При умові ж, що π-електрон місткі системи досліджуваного білка та РНК знаходяться на відстанях більших, ніж можлива передача збудження, то механізм перехоплення енергія не спрацьовує. Відсутність перехоплення триплетних збуджень, що вини π -електронмістких амінокислот альбуміну та сполук (АМФ, ГМФ, ЦМФ, УМФ), що моделюють елементарні фрагменти РНК (рис. 6).



Рис. 6. Діаграма енергетичних рівнів *π* - електронмістких амінокислот альбуміну та сполук (рАМФ, рГМФ, рЦМФ, рУМФ), що моделюють елементарні фрагменти РНК

кають в нуклеотидах, триптофаном альбуміну свідчить про те, що якщо і існує зв'язування досліджуваних систем або їх взаємне проникнення, то нуклеотиди знаходяться на відстанях $R_{A-Trp} > 20A$ від триптофанових груп альбуміну [1]. За таких умов можливі інші варіанти. Наприклад, якщо РНК проникає в білок, то це аналог зміни оточуючого середовища і, як результат, можливі характерні зміни в спектрах флюоресценції та фосфоресценції, а саме зсуви в спектрах чи їх структуризація.

Як видно з рис. 7 в спектрах флюоресценції розчинів альбумін-РНК не спостерігаються прояви взаємодії цих біомолекул, оскільки не спостерігаються додаткові смуги, або ж зсуви власних смуг. Останні досить наглядно демонструють структурні й чіткі спектри фосфоресценції, де характеристичною є смуга 387 нм яка є характерною для аденінової групи, що міститься РНК (рис. 8).





Отже, спектральних ознак зв'язування в системі альбумін-олігоРНК не спостерігається. Зовсім інша картина спостерігається при дослідженні спектральних проявів зв'язування в системі олігоаденілат-альбумін.

Аденін та аденінмісткі макромолекули беруть участь у всіх основних процесах обміну енергією в організмі. Саме вони слугують основним енергетичним джерелом для біохімічних процесів. Олігоаденілат 2'5'А₃ - полімер, що складається з трьох ланок АМФ і належить до ряду олігоаденілатів 2'5'-А₃₋₈ які активують рибонуклеазу, яка в свою чергу спричиняє руйнування вірусних РНК [6].

Дослідження люмінесценції системи 2'5'А₃-ЛА дозволило отримати ряд цікавих результатів. Зокрема, в спектрах флюоресценції при низьких температурах спостеріга-



34000 32000 30000 28000 26000 24000 22000 20000 18000 16000 Хвильове число, см⁻¹





Рис. 8. Спектри фосфоресценції олігоРНК, альбуміну та бінарного розчину даних сполук Т = 4.2 та 77 К. Водний розчин, λ ₃₅ = 260 нм, C_{oligoRNA} = 10 mM, C_{лA} = 0.6 mM

ються зсуви максимуму при переході від розчинів молекул 2'5'А₃ до бінарних розчинів 2'5'А₃-НА (рис. 9). Особливо чіткі зсуви (5 нм) спостерігаються при 4.2К в спектрі фосфоресценції бінарного розчину 2'5'А₃-НА для аденінового максимуму 387 нм, що не перекривається зі смугами фосфоресценції триптофану. Виявляється, що зсув 5 нм є типовим. Дійсно згідно нашим даним, максимум фосфоресценції триптофану при 4.2 К (рис. 10) теж зсувається саме на 5 нм при "зануренні" триптофанових груп в білкове середовище альбуміну (перехід від водних розчинів 2'5'А₃ до бінарного розчину 2'5'А₃-НА).



Рис. 10. Спектри фосфоресценції розчину 2'5'А₃, альбуміну та бінарного розчину 2'5'А₃-НА при Т = 4.2К та Т = 77К. Водний розчин, λ ₃₅ = 260 нм, С₂'₅'Аҙ = 1 mM Однак, найбільш вагомим доказом зв'язування молекул $2'5'A_3$ з альбуміном є поява чіткої структури аденінової фосфоресценції молекул $2'5'A_3$ при 77К (за умов в яких зазвичай спектр фосфоресценції $2'5'A_3$ є малоструктурним) при додаванні в розчин альбуміну (рис. 11). Тобто, додавання альбуміну до розчину $2'5'A_3$ призводить до появи ефекту аналогічного до збільшення "жорсткості" оточуючого середовища. Прикладом зміни "жорсткості" середовища, що спричиняє структуризацію спектрів фосфоресценції, може слугувати перехід від більш високої температури (T = 77K) до більш низької (T = 4.2K) (рис. 12).



Рис. 11. Спектри фосфоресценції системи 2'5'А₃–НА (1) та 2'5'А₃ (2) при Т = 77К. Водний розчин, λ_{35} = 260 нм, C_{2'5'А3} = 1 mM

Висновки. Таким чином методи аутолюмінесценції (власної флюоресценції та фосфоресценції) є досить чутливими щодо реєстрації взаємодії між біологічними об'єктами. Прикладом того, може слугувати виявлені нами спектральні прояви взаємодії між олігоаденілатом та альбуміном.

Наявні кілька спектральних проявів зв'язування альбуміну з молекулами 2'5'А₃. Однак проникнення молекул олігоаденілату в макромолекули білка не є глибоким настільки, щоб проявилися ефекти обміну енергією збудження між π-електронними системами амінокислот та олігоаденілату. Даний факт може свідчити про транспортну роль альбуміну.

Спектральних ознак зв'язування альбуміну людини з РНК не виявлено. Якщо слабке зв'язування і має місце, то воно носить периферійний характер. В нашому ж випадку порівняння спектрів фосфоресценції розчину 2'5'А₃ та системи 2'5'А₃-ЛА при температурі 77К (рис. 11) показує, що спектр суміші характеризується наявністю структури з чіткими максимумами характерники для 2'5'А₃, які не проявляються при Т = 77К. Даний факт свідчить, що 2'5'А₃ зв'язується з альбуміном, в результаті чого й відбувається зменшення ступенів вільності молекули 2'5'А₃ та з'являється чітка структура в спектрі фосфоресценції.



Рис. 12. Спектри фосфоресценції 2'5'А₃ при Т = 4.2 К (1) та Т = 77 К (2). Водний розчин,

 λ_{36} = 260 нм, C_{2'5'A3} = 1 mM

1. Горбань И.С., Ящук В.Н., Кальницкий А.Я., Найденов В.П. Особенности элементарного акта переноса энергии электронного возбуждения в макромолекулах // Журнал прикладной спектроскопии.-1987.- T. 47, №1.- C. 96-101. 2. Garrett R.H., Grisham C.M. Biochemistry. - 1999. - 851p. 3. Kudrya V.Yu., Yashchuk V.M., Levchenko S.M., Mel'nik V.I. et al. The peculiarities of the RNA luminescence // Mol. Cryst. Liq. Cryst. - 2008. - Vol. 497. - P. 93-100. 4. Lacowicz R. Principles of Fluorescence Spectroscopy. Springer Science, 2006. 5. Peters Theodore, All about Albumin; Biochemistry, genetics, and medical application. -NY: Academic press, 1996. - 432 p. 6. Stan Tsai C., Biomacromolecules. Introduction to Structure, Function and Informatics. - Willey-Liss, Canada, 2007. - 740p.7. Yashchuk V., Kudrya V., Losytskyy M., Suga H.et al. // The nature of the electronic excitation capturing centers in the DNA // Journal of Molecular Liquids. - 2006. - Vol.127, Iss.1-3. - P. 79-83. 8. Yashchuk V.M., Kudrya V.Yu., Losytskyy M.Yu., Dubey I.Ya.et al. Energy transfer in DNA. Nature of triplet excitations capturing centers // Mol. Cryst. Liq. Cryst. - 2007. - Vol. 467. - P. 311-323

Надійшла до редколегії 16.02.11

УДК 535.32/34

О. Лопатинська, асп., А. Лопатинський, асп., І. Казо, канд. фіз.-мат. наук, Л. Поперенко, д-р. фіз.-мат. наук, проф.

СПЕКТРОЕЛІПСОМЕТРИЧНИЙ КОНТРОЛЬ ПОВЕРХНІ КОМПОЗИТНИХ МАТЕРІАЛІВ НА ОСНОВІ БОРИДУ ТИТАНУ

Методами кутової, спектральної та азимутальної еліпсометрії проведено контроль поверхні композитних матеріалів на основі бориду титану. Виявлено, що поверхня зразків є неоднорідною, а поверхневому шару притаманна анізотропія таких еліпсометричних параметрів як азимут відновленої лінійної поляризації та зсув фаз між ортогональними компонентами вектора поляризації світла.

Control of composite material surface was carried out using angular, spectral and azimuthal elipsometry. It was found that the sample surface is inhomogeneous and surface layer exhibits anisotropy of such elipsometric parameters as azimuth of restored linear polarization and phase shift between orthogonal components of light polarization vector.

Вступ. Розвиток сучасних технологій та техніки вимагає значного підвищення експлуатаційних характеристик машин та механізмів, які можуть працювати в екстремальних умовах (високі температури, хімічно-агресивні середовища, значні механічні навантаження) та зменшення їх ваги й енергетичних втрат на виготовлення. Низька термічна стабільність та недостатня хімічна стійкість обмежують використання металів та сплавів за таких умов. Перспективними матеріалами є композитні керамічні матеріали, виготовлені методами порошкової металургії, що дозволяє значно знижувати енергетичні затрати в порівнянні з традиційними методами, продовжувати термін експлуатації деталей машин та механізмів.

Перспективними в цій області є керамічні матеріали, виготовлені на основі карбіду кремнію та бориду титану. Вироби з керамічного SiC широко використовують в техніці високих температур в якості вогнетривкого електроізоляційного матеріалу та як абразивний та ріжучий інструмент. Карбід кремнію також використовується для виготовлення високотемпературних напівпровідникових приладів, зокрема світлодіодів та електролюмінесцентних екранів.

В зв'язку з цим вивчення фізичних і, зокрема, оптичних та електронних властивостей керамічних матеріалів є актуальним завданням як з теоретичної, так і з практичної точок зору. Наприклад, визначення характеристик композитних матеріалів та їх порівняння з відповідними характеристиками для хімічно чистих речовин дозволяє краще зрозуміти процеси, які відбуваються під час виготовлення та в процесі застосування композитних керамічних матеріалів.

Одним із найпоширеніших методів дослідження поверхні є еліпсометричний метод [2], який є дуже чутливим до змін структури поверхні. Тому була поставлена задача: враховуючи технологію виготовлення зразків, з'ясувати: 1) рівень однорідності структури поверхневого шару шляхом порівняння оптичних властивостей по всій площі зразків; 2) величину анізотропії еліпсометричних параметрів поверхневого шару; 3) рівень стабільності оптичних властивостей після кріогенної обробки зразків.

Технологія виготовлення зразків. Вихідними матеріалами для одержання компактних зразків були порошки TiB_2 , TiC, B_4C виробництва відкритого акціонерного товариства "Донецький завод хімічних реактивів". Згідно з технічними умовами вміст вільного вуглецю в порошках: TiB_2 – не більше 0,1 %, TiC – не більше 0,5 %, B_4C – менше 5 %.

Суміш вихідних порошків ТіВ₂, ТіС, В₄С в різних співвідношеннях використовували для виготовлення шихти. Після проведення процесу гарячого пресування і подальшої механічної обробки зразки полірували.

Підготовка шихти і виготовлення зразків здійснювали за загальноприйнятою методикою одержання виробів методами порошкової металургії. Змішування і розмел компонентів проводили в кульових млинах у середовищі етилового спирту або бензину в кількості 0,4–0,6 л (в залежності від питомої ваги шихти) на 1 кг суміші. Тривалість розмолу складала 48–50 год. Розмолоту до шару з питомою поверхнею 800–2000 м²/кг шихту сушили на повітрі до повного видалення спирту або бензину. Потім суміш просушували в сушильній шафі при температурі 40 ± 10 ° С впродовж 2–3 годин, протирали через сито 042 і пресували при тиску 400–600 МПа. Гаряче пресування зразків проводили на установці напівпромислового типу СПД-120 з індукційним нагріванням без захисної атмосфери при температурі

2150 °C і тиску 30 МПа в багатомісних графітових пресформах. Після гарячого пресування зразки підлягали алмазній розмірній обробці на шліфувальних верстатах абразивними колами з зерном 125/100 і 80/63.

В роботі [5] досліджували структурно-фазовий склад керамічних матеріалів, а механічні властивості цих матеріалів, такі як мікротвердість та тріщиностійкість було розглянуто в роботі [6].

Експеримент та обговорення отриманих результатів. Отримані зразки досліджували за допомогою еліпсометричних методів, які базуються на вимірюванні характеристик відбитого від поверхні поляризованого світла [3]. Було виміряно зсув фаз Δ між паралельною та перпендикулярною по відношенню до площини падіння компонентами електричного поля відбитого поляризованого світла, а також азимут ψ відновленої лінійної поляризації. Отримавши з експерименту вищезгадані еліпсометричні параметри, можна розрахувати оптичні константи досліджуваних зразків (показник заломлення n, показник поглинання κ , а також оптичну провідність σ) [4].

Було виконано кутові, спектральні та азимутальні еліпсометричні вимірювання для поверхонь 3 масивних зразків: $TiB_2 + C^*$ (A1), поверхня якого має форму прямокутника розміром 40*5 мм²; $2TiB_2 + 3SiC$ (A2), поверхня якого має також форму прямокутника розміром 40*10 мм²; $2HfB_2 + 3SiC$ (A3),поверхня якого має квадратну форму розміром 40*40 мм²; $2TiB_2 + 1,5SiC + 1,5C^*$ (A4); $2TiB_2 + SiC + 2C^*$ (A5).

Контроль однорідності структури по поверхні композитних матеріалів здійснювався за допомогою 2-х методик.

1. Способом спектральної еліпсометрії зразок A2 досліджувався на 2-х ділянках його поверхні.

Отримані спектральні залежності оптичної провідності наведено на рис. 1.



Рис. 1. Оптична провідність зразка 2TiB₂ + 3SiC

Видно, що поверхня зразка A2 не є однорідною, бо розбіжність між значеннями σ на ділянках зразка в області енергій фотонів 1,5 еВ складає біля 10 %.

2. Однорідність структури визначено для зразків А3, А4 та А5, які досліджено за допомогою методу кутової еліпсометрії в кількох ділянках поверхні (не більше 4-х).

На рис. 2 (а, б) наведено кутові залежності еліпсометричних параметрів ψ та Δ в якості прикладу тільки для зразка А3.



Рис. 2. Кутові залежності еліпсометричних параметрів Δ а – та ψ б – для ділянок 1- 4 зразка 2HfB₂ + 3SiC

Отримані залежності $\psi(\varphi)$ та $\Delta(\varphi)$, $(\varphi - кут падіння світла на зразок) свідчать про неоднорідність структури поверхневого шару зразка в різних ділянках його поверхні, бо відмінність між значеннями <math>\psi$ та Δ в цих ділянках значно перевищує точність еліпсометричного експерименту.

Наявність анізотропії еліпсометричних параметрів поверхневого шару контролювалось за допомогою методу азимутальної еліпсометрії (коли зразок виміряно при двох азимутальних θ положеннях у власній площині відносно умовного напрямку, що пов'язаний з видовженням зразка, котрі відрізняються на $\Delta \theta = 90^{\circ}$) на зразках A1 (в центральній області) та A2 (в центральній області після кріогенної обробки).

Кутові залежності *ψ* та ∆ для зразка А1 наведені на рис. 3.



Рис. 3. Кутові залежності еліпсометричних параметрів Δ – а та ψ б – для зразка ТіВ₂ + С^{*} у центральній області

За умови, коли залежності $\Delta(\varphi)$ є незмінні у межах похибки експерименту, саме розбіжність між кутовими положеннями мінімуму кривих $\psi(\varphi)$ та самими мінімальними значеннями вказує на анізотропію оптичних властивостей скін-шару цього зразка, що може бути викликана пружно-напруженим станом сформованого поверхневого шару. Така анізотропія може бути викликана тільки технологічними факторами виготовлення поверхні зразка, а саме тим, що стискання порошкової маси в цьому процесі проводиться не за ізостатичним типом, і тоді сформованому поверхневому шару стають притаманні залишкові напруги.

Зміну оптичних властивостей поверхневого шару зразка A2 після кріогенної обробки (після перебування зразка в рідкому азоті кілька годин) також оцінено за допомогою методу азимутальної (при зміні θ) еліпсометрії.

Кутові залежності ψ та Δ для зразка A2 наведені на рис. 4.



Рис. 4. Кутові залежності еліпсометричних параметрів ∆ а – та ψ б – для зразка 2TiB₂ + 3SiC в області 1 (перед і після кріогенної обробки)

Отримані залежності свідчать про те, що і після кріогенної обробки в поверхневому шарі не зникає притаманна йому анізотропія, хоча перепад температур для стрічок фольг аморфних металевих сплавів на основі кобальту в аналогічних умовах призводить до додаткової гомогенізації структури поверхневого шару і, відповідно, до зменшення анізотропії [1], викликаної деформаційним фактором. Очевидно, у випадку композитних матеріалів додаткова гомогенізація структури, і перш за все поверхневого шару, не досягається кріогенною обробкою зразків.

Методами кутової та азимутальної еліпсометрії було досліджено зразки $2\mathrm{TiB}_2 + 1,5\mathrm{SiC} + 1,5\mathrm{C}^*$ та $2\mathrm{TiB}_2 + \mathrm{SiC} + 2\mathrm{C}^*$. Їм також притаманні оптична неоднорідність поверхні та анізотропія еліпсометричних параметрів скін-шару, які можуть бути лише наслідком технологічних умов виготовлення зразків.

Висновки. У результаті проведених досліджень з'ясовано, що: структура поверхневого шару зразків $2\text{TiB}_2 + 3\text{SiC}, 2\text{TiB}_2 + 1,5\text{SiC} + 1,5\text{C}^*, 2\text{TiB}_2 + \text{SiC} + 2\text{C}^*, і 2\text{HfB}_2 + 3\text{SiC} є неоднорідною; скін-шару зразків <math>\text{TiB}_2 + \text{C}^*,$

 2TiB_2 +1,5SiC+1,5C^{*}, 2TiB_2 +SiC+2C^{*} і 2TiB_2 +3SiC притаманна анізотропія оптичних властивостей, викликана залишковими напругами в сформованих поверхневих шарах, які зумовлені технологічними умовами виготовлення зразків та їх подальшим шліфуванням та поліруванням для створення дзеркальної поверхні; анізотропія оптичних властивостей скін-шару зразка 2TiB_2 +3SiC (A2) не зникає навіть і після кріогенної обробки.

1. Балдохин Ю.В., Козлова О.С., Макаров В.А., та ін. Структурная релаксация и кристаллизация аморфного сплава на основе кобальта // Металлофизика. – 1988. – Т. 10, № 2. – С. 7–11. 2. Борбат А.М., Горбань И.С., Охріменко Б.А. Оптические измерения. – К., 1967. 3. Поперенко Л.В. Оптичні властивості опромінених металевих дзеркал: Монографія. – К., 2005. 4. Поперенко Л.В., Стащук В.С., Шайкевич І.А., Одарич В.А. Діагностика поверхні поляризованим світлом: Монографія. – К., 2007. 5. Прокопець В.М. Лінійні та нелінійні оптичні властивості композитних керамічних матеріалів на основі SiC, AIN і Si₃N₄: Автореф. дис. кан-та фіз.-мат. наук. – К., 2005. 6. *Казо I., Ророv А.* Mechanical properties of TiB₂-TiC_C ceramic materials // Functional Materials. – 2003. – № 3. **Надійшла до редколегії 05.05.10**

УДК 539.1.05:004.042

С. Луцанич, студ., І. Кисіль, д-р фіз.-мат. наук, доц., М. Зизак, д-р. фіз.-мат. наук

РОЗРОБКА ТРИГЕРА Ј/у МЕЗОНІВ ДЛЯ МЮОННОЇ СИСТЕМИ СВМ ЕКСПЕРИМЕНТУ (GSI/FAIR/HIMEYYUHA)

Розроблено алгоритм пошуку треків у мюонному детекторі СВМ експерименту. Проведено дослідження роботи процедури пошуку в залежності від кількості станцій, які використовувались в алгоритмі. На основі алгоритму пошуку треків розроблено швидкий та ефективний тригер J/ψ мезонів. Проведено оптимізацію та детальне тестування тригеру з використанням симульованих даних.

The fast muon tracks finding algorithm in the muon system of the CBM experiment is developed. The investigation of the algorithm depending on the number of moun system stations is performed. The fast and efficient J/ψ trigger for the CBM muon system is developed based on the track finding algorithm. J/ψ trigger algorithm has been tested and optimized using simulated data.

Вступ. Дослідження фазової діаграми сильно взаємодіючої матерії одна з самих багатообіцяючих областей сучасної фізики високих енергій. Особливо цікавим є перехід від адронних до партонних ступенів вільності, що очікується за високих температур та/або високих баріонних густин. Обидві фази грали важливу роль у ранньому всесвіті та можливо існують і у наш час у ядрах нейтронних зірок. Відкриття цього фазового переходу проллє світло на два фундаментальних але досі невирішених аспекти квантової хромодинаміки: конфаймент та порушення киральної симетрії.

Для дослідження динаміки сильно взаємодіючої матерії далеко від основного стану проводяться лабораторні експерименти по ядро - ядерних зіткненнях за високих енергій налітаючих ядер. При таких зіткненнях утворюється згусток сильно взаємодіючих частинок. Цей згусток існує дуже малий час порядку 10⁻²¹ секунди, але умови в його середині можуть бути дослідженні через достатньо велику кількість випромінених адронів та їх фазовий розподіл. Важлива інформація про ранні стадії зіткнення надається ароматами кварків у складі досліджуваних адронів. Зокрема, адрони, що утримують дивні або чарівні кварки, розглядаються як високочутливі показники динаміки зіткнення. Очікується утворення як адронів, що можуть бути спостережені безпосередньо так і адронів, що можуть бути визначені через продукти розпаду на інші адрони або лептони.

СВМ (Compressed Baryonic Matter) розробляється як експеримент [4] з екстремально високими густиною потоку частинок та даних. Для проведення такого плану експериментів та ідентифікації всіх частинок, які будуть народжуватись при зіткненнях, необхідно мати не тільки високоякісні детекторні системи, але й потужні та швидкі алгоритми, які дозволять відбирати з величезної кількості подій саме цікаві з точки зору поставлених задач та досягнення фізичних результатів. У даній статті запропоновано метод відбору подій, що містять J/ψ мезони. Про-

ведені тести показали високу ефективність алгоритму як з точки зору пошуку цікавих подій, так і з точки зору придушення фонових.

Наукова програма CBM експерименту. Синхротрон SIS 300 (Heavy Ion Synchotron) на FAIR (Facility for Antiproton and Ion Research) буде побудовано в місті Дармштадт (Німеччина). SIS 300 дозволить покрити енергетичний діапазон до 45 ГеВ/нуклон для важких ядер, що добре підходить для дослідження фазової діаграми КХД в області високих баріонних густин.

Експериментальна програма досліджень CBM експерименту включає всебічне дослідження відповідних спостережуваних величин, що не були виміряні у цьому енергетичному діапазоні, зокрема, дослідження векторних мезонів які розпадаються за дилептонним каналом та виходу адронів, що утримують у своєму складі чарівні та дивні кварки.

СВМ установка. Детектуюча система CBM експерименту має вимірювати виходи, фазовий та просторовий розподіли гіперонів, легких векторних мезонів, чармонію та частинок з неспареним чарівним кварком, у тому числі дозволяти ідентифікацію протонів, піонів та каонів з високою геометричною ефективністю. Про-

блема постає у селекції дуже рідкісних подій в Au + Au (іони золота налітають на фіксовану мішень із золота) зіткненнях з частотою 10⁷ подій у секунду. При цьому народжується порядку 1000 заряджених частинок на одне центральне зіткнення. Таким чином експеримент має задовольняти наступним вимогам: швидкі та радіаційно стійкі детектори, висока ефективність та висока роздільна здатність, можливість ідентифікації електронів, мюонів та адронів, висока точність визначення вторинних вершин, високошвидкісні селекція подій та система накопичення даних.

Згідно описаних критеріїв була спроектована детектуюча система, що складається з наступних частин (рис. 1):



Рис. 1. Детектуюча система експерименту СВМ 1 – MVD (Micro Vertex Detector) – вершинний детектор; 2 – STS (Silicon Tracking System) – кремнієва трекова система, яка розташована в магніті; 3 – MUCH (MUon CHamber) – мюонний детектор; 4 – RICH (Ring Imaging Cherenkov Detector) – детектор черенковського випромінювання; 5 – TRD (Transition Radiation Detector) – детектор перехідного випромінювання; 6 – TOF (Time of Flight Detector) – детектор часу прольоту; 7 – ECAL (Electromagnetic Calorimeter) – електромагнітний калориметр

Концепція мюонної системи. Одна із основних задач мюонного детектора – подавлення адронного фону і реєстрація частинок, які пройшли весь детектор. Основу первинного фону при Au + Au зіткненнях складають піони: більше 500 треків на одну центральну подію. В той же час імовірність утворення векторних мезонів менша за 10⁻⁴ на одну центральну подію. Тому придушення фону є першочерговою задачею мюонної системи. Проектний дизайн мюонної системи зображено на рис. 2. Вона складається із 6 залізних адронних фільтрів. Перший фільтр, товщиною 20 см, розташований після трекерної системи STS в безпосередній близькості біля магніту. Наступні два фільтри також мають товщину 20 см. Інші фільтри мають товщини 30, 35 см і 1 м відповідно. Таким чином, загальна товщина 6 адронних фільтрів складає 2.25 м.





Виходячи із потреб процедури пошуку треків у випадку густого середовища, між фільтрами повинно бути не менше 3 детекторних шарів піксельного типу, які забезпечують достатньо добру роздільну здатність по X і Y координаті. Тому мюонна система складається із 18 детекторних станцій. В даній роботі досліджено монолітну геометрію мюонної системи: детекторні модулі кожної окремої станції мають однакову z координату.

Локальний пошук треків в мюонному детекторі. В цьому розділі описаний основний принцип роботи розробленого алгоритму пошуку мюонних треків, що утворюються при розпаді J/ψ мезонів. Так як цікаві для нас мюони

мають високу енергію та рухаються майже прямолінійно, то основною задачею алгоритму є швидкий та ефективний пошук треків з прямолінійними траєкторіями. Розглянемо детальніше процедуру пошуку треків на прикладі останнього триплету (сукупність 3 сусідніх детекторних станцій) мюонної детекторної системи. Алгоритм був написаний з використанням середовища CBMROOT [8].



Рис. 3. Детекторні станції останнього триплету

Введемо наступні поняття: подія – центральне Au + Au зіткнення при енергії 25 ГеВ/нуклон; хіт – точка взаємодії трека з детектором. Тобто трек, який пройшов через детекторну систему, залишить сукупність хітів (на одну детекторну станцію – 1 хіт).

Принцип роботи алгоритму наступний:

1. Для кожної події, з метою групування хітів у треки, необхідно виконати перебір по хітах. Відбувається він наступним чином: фіксуємо один з хітів на 16 станції. Далі проводимо прямі лінії через цей хіт та хіти із 18 станції (рис. 3). Запишемо рівняння прямої, яка проходить через дві точки (x_{16}, y_{16}, z_{16}) та

 (x_{18}, y_{18}, z_{18}) :

$$\frac{x - x_{16}}{x_{18} - x_{16}} = \frac{y - y_{16}}{y_{18} - y_{16}} = \frac{z - z_{16}}{z_{18} - z_{16}}$$

Всі параметри з індексом "16" стосуються хітів, які знаходяться на детекторній станції під номером 16. Аналогічно, все що з індексом "17" – стосується 17 станції, "18"–18 станції.

2. Знаходимо точку перетину (*x*₁, *y*₁) прямої, проведеної через обрані хіти (на 16 і 18 станції), із 17 детекторною станцією:

$$x_{1} = x_{16} + (x_{18} - x_{16}) \cdot \frac{z_{17} - z_{16}}{z_{18} - z_{16}}$$
$$y_{1} = y_{16} + (y_{18} - y_{16}) \cdot \frac{z_{17} - z_{16}}{z_{18} - z_{16}}$$

де z₁₇ – це положення 17 детекторної станції по осі z.

Знаходимо похибку визначення точки перетину Δx_1 та Δy_1 :

$$\Delta x_{1} = \sqrt{\frac{1}{(z_{18} - z_{16})^{2}} [(z_{18} - z_{17})^{2} \Delta x_{16}^{2} + (z_{17} - z_{16})^{2} \Delta x_{18}^{2}] + \frac{(x_{18} - x_{16})^{2}}{(z_{18} - z_{16})^{4}} [(z_{17} - z_{16})^{2} \Delta z_{18}^{2} + (z_{17} - z_{18})^{2} \Delta z_{16}^{2}]}$$

$$\Delta y_{1} = \sqrt{\frac{1}{(z_{18} - z_{16})^{2}} [(z_{18} - z_{17})^{2} \Delta y_{16}^{2} + (z_{17} - z_{16})^{2} \Delta y_{18}^{2}] + \frac{(y_{18} - y_{16})^{2}}{(z_{18} - z_{16})^{4}} [(z_{17} - z_{16})^{2} \Delta z_{18}^{2} + (z_{17} - z_{18})^{2} \Delta z_{16}^{2}]}$$

Тут Δx_{16} , Δy_{16} , Δz_{16} - похибка положення хіта на 16 детекторній станції, Δx_{18} , Δy_{18} , Δz_{18} – похибка положення хіта на 18 детекторній станції.

3. Обчислюємо відстань *L* між знайденою точкою перетину (*x*₁, *y*₁) та хітами на середній детекторній станції (положення по осі z однакове):

$$L = \sqrt{(x_1 - x_{17})^2 + (y_1 - y_{17})^2}$$

Похибку визначення довжини обраховуємо за формулою:

$$\Delta L = \sqrt{\left(\frac{x_1 - x_{17}}{l}\right)^2 \left[\Delta x_1^2 + \Delta x_{17}^2\right] + \left(\frac{y_1 - y_{17}}{l}\right)^2 \left[\Delta y_1^2 + \Delta y_{17}^2\right]}$$

4. Після цих обрахунків накладаємо обмеження на відстань від *i* - того хіта на 17 станції до точки перетину: якщо відстань між ними буде більшою певного заданого значення (обирається виходячи з деяких припущень), то даний трек відкидаємо. Треком в даному випадку називається сукупність 3 хітів на сусідніх станціях. Якщо ж відстань між точкою перетину і хітом задовольняє умову, то даний трек записуємо в масив.

5. Обираємо наступний хіт на 16 станції і повторюємо пункти 2-4.

6. Отримавши масив з можливих треків, обчислимо для кожного треку значення хі-квадрат. Для цього кожний трек необхідно апроксимувати прямою лінією. Процедура апроксимації проводилася з використанням методу найменших квадратів (МНК) [2, с. 91].

Для того, щоб знайти параметри a, b прямої (y = ax + b), яка проходить через експериментальні точки, де $i = 1 \dots n$ (n – це кількість хітів, через які проходить пряма), запишемо систему нормальних рівнянь:

$$\sum_{i=1}^{n} y_i x_i = a \sum_{i=1}^{n} x_i^2 + b \sum_{i=1}^{n} x_i$$
$$\sum_{i=1}^{n} y_i = a \sum_{i=1}^{n} x_i^2 + nb$$

Розв'язуємо дану систему лінійних алгебраїчних рівнянь методом Гауса [1]. Після того, як були знайдені параметри а і b, обрахуємо для треку нормований хі-квадрат:

$$\frac{\chi^2}{n} = \frac{\sum_{i=1}^n \left[\frac{y_i - f(x_i, \overline{a})}{\sigma_i}\right]^2}{n}$$

де $f(x_i, a)$ - теоретичне значення *у* в певній точці *x* ($f(x_i, a) = ax + b$), σ_i - похибка експериментального значення y_i (положення хіта по осі у).

Слід відмітити, що в алгоритмі пошуку апроксимація треку проводилася в 2 площинах: ZY і ZX.

7. Сортуємо всі треки в порядку зростання хі-квадрата.

8. Обираємо трек із найкращим хі-квадратом та запам'ятовуємо положення хітів, які входять до складу цього треку. Обираємо наступний трек (із гіршим значенням хі-квадрату). Якщо до складу цього треку входить хоча б один хіт, який був використаний до цього, трек відкидаємо. Якщо ж хіти цього треку відрізняються від тих, які були використані раніше, трек запам'ятовуємо.

9. Формуємо остаточний масив реконструйованих треків.

Слід також відзначити, що алгоритм пошуку не враховує перерозсіяння частинок в абсорберах.

Ј/Ѱ тригер. Одним із яскравих сигналів утворення кварк-глюонної плазми (КГП) в зіткненнях важких ядер може бути придушення виходу J/ψ мезонів [7] в процесах, коли утворюється КГП, в порівнянні з процесами без утворення КГП. J/ψ мезон – це зв'язаний стан із спіном 1 чарівних кварку c і антикварку \bar{c} . Маса J/ψ мезона складає 3.1 ГеВ, раді ус ~ 0.2 фм. Народження J/ψ мезона в СВМ проекті планується детектувати за лептонним каналом: $J/\psi \rightarrow e^+e^-$ або ж $J/\psi \rightarrow \mu^+\mu^-$.

Для дослідження таких явищ, як утворення кваркглюонної плазми, необхідно мати в розпорядженні значну статистику реконструйованих J/ψ - мезонів [3]. Імовірність утворення J/ψ мезона на 1 центральне Au + Au зіткнення (при початковій енергії іонів золота E = 25 ГеВ/нуклон) складає ~ 10⁻⁶. Тобто, щоб набрати статистику з 10⁶ J/ψ мезонів, необхідно ~ 1 місяця вимірів, враховуючи вихід мезонів для Au + Au зіткнень, ефективність реконструкції та максимальну частоту реакції 10 МГц.

Інформаційно – накопичувальна система (IHC) CBM експерименту планується такою, що буде здатна опрацьовувати максимальну інтенсивність подій в 25 КГц. Якщо інтенсивність подій, які будуть оброблятися IHC зменшити в 400 раз, то CBM експеримент зможе працювати на повній проектній світимості в 10 МГц.

У зв'язку з цим необхідна розробка тригера, який би дозволив відбирати лише ті події, в яких було зафіксовано утворення J/ψ мезонів. Це дозволить зменшити час набору статистики від 1 року до 1 місяця. Під тригером тут розуміється сукупність деяких умов, які повинні забезпечити виділення певної події. Якщо подія (центральне Au + Au зіткнення при енергії 25 ГеВ/нуклон), задовольняє цим умовам, то така подія буде зареєстрована. Мета тригера – виділяти зіткнення, при яких народжувався J/ψ -мезон.

Принцип роботи тригера базується на роботі розробленого алгоритму пошуку мюонних треків з певними додатковими модифікаціями. Крім 16, 17 та 18 станцій мюонного детектора, з метою зменшення кількості фонових первинних треків (протони, піони, каони ...) та вторинних треків, які народились в поглиначах мюонної детекторної системи (e^+ , e^- ...), використовуються додатково 12 та 15 станції. Тобто в алгоритмі тригера використовуються хіти з 12, 15, 16, 17, 18 станцій.



Рис. 4. Принцип роботи алгоритму тригера для Ј/ψ-мезонів

Розглянемо процедуру детальніше:

1. Робимо перебір по хітах з 12 станції (рис. 4). Фіксуємо один з хітів. Проводимо прямі які проходять через цей хіт та хіти із 16 станції. Для кожної проведеної прямої шукаємо її точку перетину (та похибку перетину) із 15 станцією. Від отриманої точки перетину рахуємо відстань (та похибку визначення відстані) до кожного хіта із 15 станції. Накладаємо обмеження (умову) на відстань: якщо отримане значення задовольняє поставленому обмеженню, то трек запам'ятовуємо.

2. Фіксуємо отриманий хіт із 15 станції (якій входить до складу треку, котрий задовольнив умові на відстань). Знову проводимо прямі які проходять через цей зафіксований хіт та хіти із 17 станції. Для кожної проведеної прямої шукаємо її точку перетину (та похибку перетину) із 16 станцією. Від отриманої точки перетину рахуємо відстань (та похибку визначення відстані) до кожного хіта із 16 станції. Накладаємо обмеження на відстань: якщо отримане значення задовольняє поставленому обмеженню, то трек запам'ятовуємо.

 Фіксуємо отриманий хіт на 16 станції. Проводимо аналогічним чином всі процедури та запам'ятовуємо всі треки, що задовольняють поставленому обмеженню на відстань. Обираємо наступний хіт на 12 станції і повторюємо пункти 2–4.

4. Отримаємо набір сформованих треків, кожен з яких проходить через 5 детекторних станцій.

5. Екстраполюємо кожен трек в область мішені. Знаходимо точку перетину з мішенню (x, y, z).

6. Рахуємо для сформованих треків хі-квадрат. Для цього хіти, які входять до складу треку (з 12, 15, 16, 17, 18 станцій) та відповідну точку перетину треку з мішенню (отриманої з екстраполяції, пункт 5), необхідно апроксимувати прямою лінією. Процедура апроксимації проводилася з використанням методу найменших квадратів (МНК) [2, с. 91].

7. Отже, для кожного треку тепер відоме значення хі-квадрату та точка перетину треку з мішенню (отриманої з екстраполяції, пункт 5). Накладаємо обмеження на значення хі-квадрату та значення відстані (від точки перетину з мішенню до центру мішені). Якщо трек задовольняє умовам обмеження, то трек записуємо в новий масив.

8. Проводимо сортування та відбір треків по хі-квадрат (аналогічним чином як було описано в алгоритмі пошуку мюонних треків). Формуємо остаточний масив реконструйованих треків.

Важливою задачею при написанні алгоритму був підбір значень, які мали використовуватися як регулюючі умови в алгоритмі, а саме значення хі-квадрату для трека та тригер умови.

Тестування алгоритму тригера. Для тестування розроблено алгоритму тригера Ј/ψ-мезонів використовувалися наступні симульовані дані:

• 5000 центральних Au + Au зіткнень при енергії 25 ГеВ/нуклон. Для їх отримання використовувався генератор UrQMD (Ultrarelativistic Quantum Molecular Dynamics).

• 100000 подій, в кожній з яких симульований розпад J/ψ - мезона по мюонному каналу. Для симуляції використовувався генератор PLUTO.

Для оцінки роботи даного алгоритму, слід ввести наступні поняття. Крім правильно реконструйованих треків, тобто тих, що відповідають промодельованим, при реконструкції зустрічаються [5]:

• Clone – додатково реконструйовані треки. З'являються у випадках, коли двом реконструйованим трекам відповідає один промодельований.

• Ghost – неправильно реконструйовані треки (не відповідають жодному з промодельованих).

При цьому трек вважається реконструйованим у випадку, коли більше ніж 70 % хітів [6] співпадають з хітами відповідного промодельованого треку певної частинки.

Введемо поняття ефективності реконструкції треків, імовірності клонових треків та імовірності неправильно реконструйованих треків. Ефективність реконструкції треків J/ψ-мезонів (*Allset_efficiency*) визначається як відношення числа реконструйованих треків, для яких був знайдений аналог серед промодельованих треків, до загальної кількості промодельованих треків.

$$Allset_efficiency = \frac{NRT - NClones - NGhosts}{NMC}$$

де *NRT* – загальна кількість реконструйованих треків; *NClones* – кількість треків клонів; *NGhosts* – кількість неправильно реконструйованих треків; *NMC* – кількість промодельованих треків. Імовірність клонових треків (*Clone_probability*) визначається як відношення кількості реконструйованих клонових треків до загальної кількості реконструйованих.

$$Clone_probability = \frac{NClones}{NRT},$$

де *NRT* – загальна кількість реконструйованих треків; *NClones* – кількість треків клонів.

Імовірність неправильно реконструйованих треків (*Ghost_probability*) визначається як відношення кількості неправильно реконструйованих треків до загальної кількості реконструйованих.

$$Ghost_probability = \frac{NGhosts}{NRT},$$

де *NRT* – кількість реконструйованих треків; *NGhosts* – кількість неправильно реконструйованих треків.

Результати роботи алгоритму пошуку мюонних треків, що утворилися при розпаді Ј/ψ-мезонів наведено в табл. 1.

Таблиця 1. Результати роботи алгоритму пошуку мюонних треків від Ј/ψ-мезонів

| Оброблена кількість подій | 100000 |
|---------------------------|--------|
| Allset efficiency, % | 87.5 |
| Clone probability, % | 0 |
| Ghost probability, % | 2.9 |
| NMC на 1 подію | 1.05 |

Для оцінки роботи J/ψ – тригера, слід ввести такі поняття: коефіцієнт подавлення фону та ефективність тригера.

Коефіцієнт подавлення фону (*BSF* – Background Suppression Factor) визначається як відношення кількості подій (фонових, від Au + Au зіткнень), для яких число реконструйованих треків дорівнює двом і більше, до загальної кількості подій.

$$BSF = \frac{NOfEvents_{fon}}{TNE}$$

де *NOfEvents* - кількість фонових подій (від Au+Au зіткнень), для яких число реконструйованих треків дорівнює більше або рівне двом; *TNE* — загальна кількість подій.

Ефективність тригера J/ψ-мезонів (*reco_eff*) визначається як відношення кількості подій (сигнальних), для яких число реконструйованих треків дорівнює двом і більше, які мають аналог серед треків промодельованих, до загальної кількості подій, в яких є промодельований J/ψ-мезон.

$$reco_eff = \frac{NOfEvents_{signal}}{NMCE}$$

де NOfEvents_{signal} - кількість сигнальних подій, для

яких число реконструйованих треків більше або рівне двом та які мають аналог серед промодельованих; *NMCE* - загальна кількість подій, в яких є промодельований J/ψ-мезон.

Було встановлено, що коефіцієнт подавлення фону та ефективність пошуку треків від Ј/ψ-мезонів залежать від того, скільки станцій детекторної системи використовувати в алгоритмі тригера. Збільшення кількості станцій призводить до зменшення кількості неправильно реконструйованих треків, що підвищує ефективність пошуку треків від Ј/ψ-мезонів. Але при використанні більшої кількості станцій суттєво збільшується час опрацювання алгоритмом однієї події.

Виходячи з таких умов, було знайдено оптимальне число детекторних станцій, які слід використовувати в тригері. Їх кількість рівна п'яти (12, 15, 16, 17, 18 станції).

Результати, отримані з тестування алгоритму, свідчать про те, що тригер для J/ψ мезонів дозволяє зменшити в 415 раз кількість подій, які будуть записуватись інформаційно – накопичувальною системою експерименту. При цьому, ефективність пошуку треків від J/ψ мезонів складає порядку 80–81 %.

Висновки. У даній роботі розроблено алгоритм локального пошуку треків у мюонному детекторі СВМ експерименту. Простота та ефективність алгоритму дозволяє отримати високу швидкість опрацювання даних. Великою перевагою розробленого алгоритму є також те, що він працює незалежно від інших детекторів.

Проведені дослідження показали, що при використанні в алгоритмі пошуку більшої кількості станцій зменшується число неправильно реконструйованих треків (як фонових так і сигнальних), але при цьому суттєво збільшується час опрацювання даних. Найкращі результати при реконструкції фізичних подій були отримані у випадку використання 5 станцій. На основі алгоритму пошуку мюонних треків розроблений тригер для J/ψ мезонів. Результати, отримані з тестування алго-

ритму свідчать про те, що тригер для J/ψ мезонів дозволяє достатньо зменшити кількість подій, які будуть записуватись інформаційно – накопичувальною системою (більше ніж в 400 раз). Отримане значення ефективності пошуку складає порядку 80–81 %. Це, в свою чергу, дозволить проводити експеримент на повній проектній світимості в 10 МГц, що було неможливим до цього (через обмежену швидкість опрацювання даних ІНС СВМ експерименту – 25 КГц).

1. Бате К., Вилсон Е. Численные методы анализа и метод конечных элементов / Пер. з англ. А.С. Алексеева та ін.; За ред. А.Ф. Смирнова. — М., 1982. 2. Каденко І.М., Плюйко В.А. Основи методів оцінок статистичних даних та функцій їх розподілу: Навч. посібник. - К., 2003. З. Киселева А.Н. Ядерно-физическое обоснование проведения измерений димюонного канала распада векторных мезонов в СВМ эксперименте // Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, Гатчина – 2009 г. 4. CBM Experiment Progress Report 2009 / Ed. by V. Friese. - Darmstadt, 2009. 5. Kisel I., Masciocchi S. CATS: a cellular automaton for tracking in silicon for the HERA-B vertex detector // HERA-B note 99-242. - 1999. 6. Kisel I. Event reconstruction in the CBM experiment // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A566 (2006) 85–88. – 2006. 7. Matsui T., Satz H. J/ψ suppression by quark-gluon plasma formation // Physics Letters B. - 1986. - V.178. - P. 416. 8. Root An Object-Oriented Data Analysis Framework Users Guide 5.26, December 15, 2009. Надійшла до редколегії 15.10.10

УДК 539.213; 539.1.044

М. Макарець, д-р фіз.-мат. наук, проф., О. Юхименко, студ.

РІВНЯННЯ ДЛЯ ФУНКЦІЇ ПРОСТОРОВОГО РОЗПОДІЛУ ІМПЛАНТОВАНИХ ІОНІВ ТА ЙОГО КУМУЛЯНТІВ

Розвинуто метод розв'язку так званого оберненого транспортного рівняння Больцмана для функції просторового розподілу швидких іонів, імплантованих у тверде тіло. Він полягає у зведенні цього 3D інтегрального рівняння до ланцюжка одномірних рівнянь для кумулянтів функції розподілу. Вони отримані у зручному для чисельного роз'язання вигляді. Досліджено їх граничну поведінку при малих і великих непружних втратах енергії і встановлено зв'язок з теорією Лінхарда-Шарфа-Шіотта.

A method is proposed for solving of the so-called backward transport Boltzmann equation for function of the spatial distribution of fast ions implanted into solid. It lies in replacing of the 3D integral equation by a chain of one-dimensional equations for the distribution cumulants. These equations were received in a convenient form for numerical solution. Limiting behavior of them at small and large inelastic energy losses and their relation to the Lindhard-Scharf-Schiøtt theory was made.

Вступ. В роботі [5] було запропоновано модель сповільнення швидкого іона у твердому тілі, згідно якої він має пружні зіткнення з атомами як цілими лише через випадкові скінченні інтервали прямолінійного руху, який відбувається з неперервними втратами енергії на збудження електронної підсистеми твердого тіла. Для функції розподілу зупинених іонів всередині твердого тіла, в рамках цієї моделі було отримане так зване обернене рівняння переносу Больцмана:

$$F(E,\vec{u},E_{s},\vec{r}) = = \int_{0}^{\infty} \int_{0}^{2\pi} F(E',\vec{u}',E_{s},\vec{r}-\vec{u}l)\Theta(E'-E_{s})f_{1}(l)dlf_{2}(p)dpf_{3}(\beta)d\beta + \int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \delta(\vec{r}-\vec{u}l)\Theta(E_{s}-E')f_{1}(l)dlf_{2}(p)dp,$$
(1)

де $F(E, \vec{u}, E_s, \vec{r}) d\vec{r}$ – імовірність того, що іон набув деякої малої енергії $E_{s} << E$, тобто "зупинився" в околі $d\vec{r}$ точки P з координатою \vec{r} , стартувавши з енергією E у напрямі *й* з початку системи координат всередині нескінченно твердого тіла; $E' = E - T_n - T_l$ – енергія іона після першого пружного зіткнення, у якому він передав енергію T_n атому, а на шляху l до нього, у непружних зіткненнях з електронами мішені, передав їм енергію $T_l = T_l(E, l)$ без зміни напряму руху; $\vec{u}' = \vec{u}'(\vec{u}, \theta, \beta)$ – орт напряму руху іона після пружного розсіяння на кут $\theta(E-T_l, T_n)$ у площині розсіяння, яка утримує вектор \vec{u} і атом і повернута на азимутальний кут β відносно умовної площини, яка утримує вектор \vec{u} і орт \vec{i} ; $\vec{r} - \vec{u}l$ – координати точки першого пружного зіткнення, у якій перетинаються асимптоти траєкторії іона до і після зіткнення; $\Theta(E' - E_s)$ – функція Хевісайда, яка тут задає імовірність того, що іон не зупинився після зіткнення; $f_1(l) dl$ – імовірність пружного зіткнення після шляху l; $f_2(p)dp$ – імовірність розсіяння на атомі з прицільною відстанню p; $f_3(\beta)d\beta$ – імовірність повороту площини розсіяння на кут β ; $\delta(\vec{r} - \vec{u}l)$ – функція Дірака, яка тут задає щільність розподілу іонів, що зупинилися до першого пружного розсіяння внаслідок лише електронного гальмування.

У серії своїх досліджень автори [4,5] зводили рівняння (1) до диференціальних рівнянь для моментів розподілу $F(E, \vec{u}, E_s, \vec{r})$. На жаль, ці рівняння виявилися нестійкими, тому не вдалося побудувати чисельний метод, який би давав кілька моментів найнижчих порядків для енергій до десятків МеВ, які зараз вже є актуальними. Пізніше, в роботах [6, 7, 3]

було розвинуто кумулянтний підхід для дослідження розподілу імплантованих іонів в рамках теорії Ліндхарда-Шарфа-Шіота (ЛШШ) [1, 8]. Отримані у роботах [6, 7, 3] рівняння та розвинутий чисельний метод не мають згаданих вад, тому в цій роботі зроблено спробу застосувати кумулянтний підхід для теоретичного дослідження (1).

Рівняння для функції розподілу. В (1) невідома функція залежить від 8-и змінних, тому проведемо ряд спрощень. Обмежимося випадком $E_{s} = 0$, для якого другий доданок у правій частині (1) зникне. Врахуємо, що атом мішені, на якому відбудеться перше пружне розсіяння, розміщений випадково, тому кут β випадковий і рівномірно розподілений від 0 до 2π , отже $f_3(\beta) = 1/2\pi$. Оскільки прицільна відстань р при парному зіткненні всередині твердого тіла рівномірно розподілена на інтервалі від нуля до максимально можливої, то $f_2(p)dp = dp/p_{\text{max}}$. Для сповільнення частинки втрата енергії у пружному зіткненні Т, є інформативнішою ніж прицільна відстань р, хоча вони і зв'язані залежністю $T_n(E-T_l, p)$ із [2]. Тому введемо T_n як незалежну змінну, задану на інтервалі [T_{\min} , T_{\max}], і відповідну їй імовірність $f_2(p)dp \Rightarrow d\sigma_n(E-T_l, T_n)/\sigma_n(E-T_l)$, де $d\sigma_n(E-T_1,T_n)$ – диференціал перерізу пружного розсіяння іона з енергією $E-T_l$, а $\sigma_n(E-T_l)$ – повний переріз цього розсіяння. Що до функції $f_1(l)$, то її вигляд визначимо пізніше задавши модель розміщення атомів у мішені.

Введемо систему координат, початок відліку якої розмістимо в точці початку руху іона, а вісь *Oz* направимо вздовж його швидкості. Тоді в лівій частині (1) © Макарець М., Юхименко О., 2011 $\vec{u} = \vec{k}$ і можна ввести нову щільність розподілу, залежну лише від чотирьох змінних, а саме $\Pi(E, \vec{r}) = F(E, \vec{k}, 0, \vec{r})$. Щоб використати цю ж функцію і у правій частині (1) зробимо наступні три перетворення координат. Першу нову систему (штриховані осі на Рис. 1) будуємо паралельним переносом старої на відстань l вздовж осі Oz у точку S; другу (два штрихи) – повернувши на кут β навколо осі Oz' проти годинникової стрілки, якщо дивитися проти цієї осі, так щоб атом мішені T опинився в площині x''Sz''; а третю (три штрихи) – повернувши аналогічно на кут розсіяння $\theta \equiv \theta(E - T_l, T_n)$ навколо осі Oy''. На рис. 1 також зображено початок нових систем координат у точці S; площину розсіяння (сіра); циліндр довжиною l радіусом p_{max} , в основі якого знаходиться атом мішені T.



Рис. 1. Системи координат у момент старту іона та після першого пружного розсіяння

Тоді, координати точки P в правій частині (1) можна представити у вигляді $\vec{r}''' = A_{ij} (\theta, \beta) (x_j - l\delta_{j3}) \vec{e}_i''',$ де δ_{ji} – символ Кронекера, а матриця результуючого повороту має вигляд:

$$A = \begin{bmatrix} \cos(\beta)\cos(\theta) & \sin(\beta)\cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ -\sin(\beta) & \cos(\beta) & 0 \\ \cos(\beta)\sin(\theta) & \sin(\beta)\sin(\theta) & \cos(\theta) \end{bmatrix}.$$
 (2)

Вона не симетрична, тому нові координати x''' і y''' по різному виражаються через старі координати і кути, хоча, в силу аксіальної симетрії розподілу, вони еквівалентні. Це буде використано далі для перевірки узгодженості рівнянь.

Враховуючи всі проведені вище наближення і перетворення, рівняння (1) набуває вигляду:

$$\Pi(E,\vec{r}) =$$

$$= \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \int_{0}^{2\pi} \Pi(E',\vec{r}'''(\vec{r},l,\theta,\beta)) f_1(l) dl \frac{d\sigma_n(E-T_e,T_n)}{\sigma_n(E-T_e)} \frac{d\beta}{2\pi} \cdot (3)$$

Рівняння (3) є однорідним інтегральним рівнянням Фредгольма 2-го роду. Воно описує просторовий розподіл імплантованих іонів у змінних, типових для задач іонної імплантації, тому пошук його розв'язку є актуальним. Для його дослідження використаємо кумулянтний підхід, розвинутий у [7,3].

Кумулянти розподілу і рівняння для них. Спочатку функцію розподілу формально представимо через так звану другу характеристичну функцію $\Phi(E, \vec{w})$ [6, 3]:

$$\Pi(E,\vec{r}) = \frac{1}{\left(2\pi\right)^3} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-i\vec{w}\cdot\vec{r} + \Phi(E,\vec{w})\right) d\vec{w} \,, \quad (4)$$

де $\vec{w} = (u, v, w)$ – вектор-рядок декартових координат оберненого простору, а крапка позначає скалярний добуток вектор-рядка і вектор-стовпчика. Оскільки $\Phi(E, \vec{w})$ є твірною для кумулянтів просторового розподілу $\chi_{iik}(E)$ [6], то:

$$\Phi(E,\vec{w}) = \sum_{i,j,k=0}^{\infty} i^{i+j+k} \chi_{ijk}(E) \frac{u^{i} v^{j} w^{k}}{i!j!k!}, \quad (5)$$

де $\chi_{000} = \ln(\langle 1 \rangle) = 0$, а трикутні дужки навколо виразу позначають його усереднення з функцією розподілу $\Pi(E, \vec{r})$, нормованою на 1, N = i + j + k – порядок кумулянта. Кількість З-індексних кумулянтів до N-го порядку включно рівна (N+1)(N+2)(N+3)/6. Зв'язок просторових моментів $\langle x^{t}y^{m}z^{n} \rangle$ з кумулянтами відомий – [3].

Введена щільність розподілу має осьову симетрію, зумовлену симетрією $f_3(\beta)$. Симетрію характеристичної функції та кумулянтів можна знайти із симетрії $\Pi(E, \vec{r})$. Зокрема, коли остання інваріантна відносно поворотів з деякою матрицею \hat{O} , яка діє зліва на векторстовпчик \vec{r} , тобто $\Pi(E, \hat{O}\vec{r}) = \Pi(E, \vec{r})$, то після заміни змінних в (4), можна отримати:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-i\vec{w}\cdot\vec{r} + \Phi\left(E,\vec{w}\hat{O}^{-1}\right)\right) \det\left(\hat{O}^{-1}\right) d\vec{w} =$$
$$= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-i\vec{w}\cdot\vec{r} + \Phi\left(E,\vec{w}\right)\right) d\vec{w}$$

звідки випливає:

$$\Phi(E,\vec{w}) = \Phi(E,\vec{w}\hat{O}^{-1}) / \det(\hat{O}) = \Phi(E,\vec{w}\hat{O}^{-1}), \quad (6)$$

де оператор \hat{O}^{-1} діє справа на вектор рядок \vec{w} , а для матриці поворотів $\det(\hat{O}) = 1$.

Осьова симетрія розподілу відносно напряму початкової швидкості іона дозволяє поворот осей на довільний кут φ навколо осі Oz, тому $\Pi(E, \vec{r}) \equiv \Pi(E, x^2 + y^2, z)$, де нова функція розподілу Π (позначена тією ж літерою) має ще на один аргумент менше ніж F. 3 (6) випливає, що друга характеристична

функція має аналогічну симетрію у площині змінних (u, v). Отже її залежність від u і v аналогічна залежності $\Pi(E, s\vec{r})$ від x і y. Тому (5) набуває вигляду:

$$\Phi(E, \vec{w}) = \sum_{i,j,k=0}^{\infty} i^{i+j+k} \chi_{ijk} \left(E\right) \frac{u^{i} v^{j} w^{k}}{i!j!k!} = = \sum_{n,m=0}^{\infty} i^{2n+m} \kappa_{(2n)m} \left(E\right) \frac{\left(u^{2} + v^{2}\right)^{n} w^{m}}{(2n)!m!} , \qquad (7)$$

де $\kappa_{(2n)m}$ – двохіндексні просторові кумулянти, які незалежні між собою і ненульові, а кумулянти з непарним першим індесом рівні нулю. Кількість ненульових двохіндексних кумулянтів порядку Nрівна $K_N = [N/2]+1$, де [x] – позначає цілу частину x, а всіх, до порядку N включно, рівна $N^2/4 + N + (1 - (-1)^N)(1 + 2(-1)^N)/8$, і завжди менша ніж кількість триіндексних кумулянтів. Зокрема, до 3-го порядку включно існує 5 двоіндексних кумулянтів і 20 триіндексних. Зв'язок кумулянтів різних типів дає рівність похідних однакового порядку по (u, v, w) в нулі:

$$\chi_{(2i)(2j)m} = \kappa_{2(i+j)m} \frac{C_{i+j}^{j}}{C_{2i+2j}^{2j}} = \kappa_{2(i+j)m} \frac{C_{i+j}^{i}}{C_{2i+2j}^{2i}}, \qquad (8)$$

де C_n^k – біноміальні коефіцієнти.

Щоб отримати рівняння для кумулянтів підставимо вирази (4, 7) і (8) у рівняння (3) і перенесемо всі доданки в ліву частину. Тоді, після заміни змінних під інтегралом у правій частині та деяких перетворень, отримаємо вираз:

$$\int_{V_w} \exp(-i\vec{r}\vec{w}) G(E,\vec{w}) d\vec{w} = 0, \quad \forall \vec{r} , \qquad (9)$$

де введено позначення:

$$G(E,\vec{w}) = \exp(\Phi(E,\vec{w})) - \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \int_{0}^{2\pi} \exp(\Phi(E',w_k A_{kn}^{-1}(\theta,\beta)) + ilw) f_1 dl \frac{d\sigma_n}{\sigma_n} \frac{d\beta}{2\pi},$$
(10)

а аргументи заданих функцій $f_1, \sigma_n, d\sigma_n$ під інтегралом не виписані явно.

ĸ

Перший множник під інтегралом в (9) задає ортогональний базис розкладу, тому інтеграл дорівнює нулю тоді і тільки тоді коли підінтегральна функція $G(E, \vec{w}) = 0$ при всіх значеннях вектора \vec{w} . Отже її розклад в ряд Тейлора навколо нуля по всіх компонентах вектора \vec{w} також має нульові коефіцієнти. Це і дає рівняння для кумулянтів:

$$\frac{\partial^{2i+2j+m}G(E,\vec{w},l)}{\partial u^{2i}\partial v^{2j}\partial w^m}\Big|_{\vec{w}=0} = 0.$$
(11)

Рівняння (11) нетривіальне за умови N = 2(i+j) + m > 0, оскільки кумулянт нульового порядку є нормуванням розподілу і рівний одиниці. Цей алгоритм виводу рівнянь має внутрішній критерій перевірки, а саме: рівняння, отримані із (11) повинні бути незалежними від перестановки індексів *i* та *j*, незважаючи на те, що матриця поворотів $A^{-1}(\theta,\beta)$ не симетрична відносно перестановки 1-го і 2-го стовпчиків, які відповідають за перетворення змінних *u* і *v* оберненого простору після першого пружного розсіяння.

Отримаємо тепер рівняння для кумулянтів. Проективний пробіг іона є одним із трьох кумулянтів першого порядку і за означенням $R_p(E) \equiv \langle z \rangle = \chi_{001} = \kappa_{01}$, тому i = j = 0, а m = 1. Два інші кумулянти рівні нулю в силу осьової симетрії розподілу. З (11) безпосереднім обчисленням, після врахування (2) і (8) та інтегрування по куту β , отримуємо наступне рівняння для проективного пробігу:

$$\kappa_{01}(E) = \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \left(\kappa_{01}(E') \cos(\theta) + l \right) f_1(l) dl \frac{d\sigma_n}{\sigma_n}, \quad (12)$$

подальші спрощення якого можливі лише при конкретизації функції $f_1(l)$.

Страглінги розподілу [8], поздовжній κ_{02} і поперечний κ_{20} є ненульовими кумулянтами другого порядку. Для них, аналогічно до (12), отримуємо:

$$F_{02}(E) + \kappa_{01}^{2}(E) = \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \left\{ \kappa_{02}(E')\cos^{2}(\theta) + \kappa_{20}(E')\sin^{2}(\theta) + K_{01}(E')\cos^{2}(\theta) + 2\kappa_{01}(E')\cos(\theta)l + l^{2}) \right\} f_{1}dl \frac{d\sigma_{n}}{\sigma_{n}},$$
(15)

$$\kappa_{20}(E) = \frac{1}{2} \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \left\{ \kappa_{02}(E') \sin^{2}(\theta) + \kappa_{20}(E') (1 + \cos^{2}(\theta)) + \right\} f_{1} dl \frac{d\sigma_{n}}{\sigma_{n}}.$$
(16)

Праві частині (15, 16) містять обидва невідомі кумулянти і тому ці інтегральні рівняння утворюють лінійну систему, що значно ускладнює пошук її розв'язку. Ерзацкумулянти і рівняння для них. Проведені дослідження показали, що кумулянти порядку $N \ge 2$ описуються системою N інтегральних лінійних

неоднорідних рівнянь, яку можна записати у векторно-матричному вигляді:

$$\vec{\kappa}_{N}(E) = \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \left\{ \hat{F}_{N} \vec{\kappa}_{N}(E') \right\} f_{1} dl \frac{d\sigma_{n}}{\sigma_{n}} + G\left(\vec{\kappa}_{N-1}(E), \dots, \vec{\kappa}_{1}(E) \right)$$
(17)

де $\vec{\kappa}_N$ – вектор-стовпчик із K_N кумулянтів N-го порядку, наприклад: $\vec{\kappa}_2 = (\kappa_{02} \kappa_{20})^T$, $\vec{\kappa}_3 = (\kappa_{03} \kappa_{21})^T$, а \hat{F}_N – матриця розміром $K_N \times K_N$ із коефіцієнтів біля компонент вектора $\vec{\kappa}_N(E')$ під інтегралом у (17), наприклад:

$$\hat{F}_2 = \begin{pmatrix} \cos^2(\theta) & \sin^2(\theta) \\ \frac{1}{2}\sin^2(\theta) & \frac{1}{2}(1+\cos^2(\theta)) \end{pmatrix},$$
$$\hat{F}_3 = \begin{pmatrix} \cos^3(\theta) & 3\cos(\theta)\sin^2(\theta) \\ \frac{1}{2}\cos(\theta)\sin^2(\theta) & -\frac{1}{2}(1-3\cos^2(\theta)) \end{pmatrix}$$

Другий доданок у правій частині (17) залежить лише від уже відомих кумулянтів нижчих порядків.

Нетривіальним виявилося те, що (17) можна діагоналізувати ввівши нові змінні, так звані ерзацкумулянти [7], шляхом лінійної заміни $\vec{\kappa}_N = \hat{M}_N \vec{\eta}_N$ із сталою матрицею \hat{M}_N , незважаючи на те, що матриця \hat{F}_N нестала. Тоді у нових змінних система рівнянь (17) набуває вигляду:

$$\vec{\eta}_{N}(E) = \\ = \int_{0}^{\infty} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \left\{ \hat{M}_{N}^{-1} \hat{F}_{N} \hat{M}_{N} \vec{\eta}_{N}(E') \right\} f_{1} dl \frac{d\sigma_{n}}{\sigma_{n}} + , \qquad (18) \\ + \tilde{G} (\vec{\eta}_{N-1}(E), ..., \vec{\eta}_{1}(E))$$

де умова діагональності матриці $\hat{F}_N \equiv \hat{M}_N^{-1} \hat{F}_N \hat{M}_N$ дає нелінійні рівняння для пошуку елементів матриці $M_{N,kl}$. Було показано, що існує K_N різних матриць \hat{M}_N , наприклад, для кумулянтів 2-го і 3-го порядків вони мають вигляд:

$$\hat{M}_{2}^{(1)} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 1 & 2 \\ 1 & -1 \end{pmatrix}, \quad \hat{M}_{2}^{(2)} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 2 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix},$$
$$\hat{M}_{3}^{(1)} = \frac{1}{5} \begin{pmatrix} 2 & 3 \\ -1 & 1 \end{pmatrix}, \quad \hat{M}_{3}^{(2)} = \frac{1}{5} \begin{pmatrix} 3 & 2 \\ 2 & -2 \end{pmatrix}.$$

Важливо також те, що серед них є одна, яка співпадає із єдиною матрицею для аналогічною переходу від кумулянтів до ерзацкумулянтів у аналогічних рівняннях, отриманих в теорії ЛШШ [6, 7, 8], що дає можливість порівняти їх результати.

Тому в роботі були використані матриці з [6, 7], а для виводу рівнянь для кумулянтів було створено програму комп'ютерної алгебри. Ці рівняння наводяться далі у безрозмірних змінних [1, 8, 9]: $\varepsilon = E/E^*$, $t = T/E^*$, $t_l = T_l/E^*$, $\eta_{ij}(E) = \chi_{ij}(\varepsilon)/(R^*)^{(i+j)}$, де $E^* = 2RyZ_1Z_2(1+\mu)a_s$, $Ry \approx 13.6$ еВ – Ридберг, $Z_{1,2}, m_{1,2}$ – атомні номери та маси іона і атома мішені, відповідно, $\mu = m_1/m_2$, $a_{scr} = a_s a_0 \approx 0.8853 a_0/(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})$ – радіус екранування згідно [9], a_0 – радіус Бора, $R^* = 1/\gamma na_{scr}^2$, $\gamma = 4\mu/(1+\mu)^2$, n – атомна концентрація мішені, $\sigma_n(\varepsilon) = \sigma_n(E)/\pi a_{scr}^2$.

Атоми мішені вважаємо розміщеними згідно рідинній моделі [4], тому $f_1(l) = \delta(l - \Lambda)$, де середня довжина вільного пробігу іона до першого пружного зіткнення задається як $\Lambda = 1/n\sigma_n(E - T_\Lambda)$. При відомих $\sigma_n(E)$ та $T_\Lambda = T_l(E, \Lambda)$ це задає рівняння для визначення $\Lambda(E)$. У безрозмірних змінних використовуємо $\lambda = \Lambda/R^*$.

Обезрозміривши рівняння для кумулянта 1-го порядку $\kappa_{01}(E) = \eta_{01}(E)$ і для ерзацкумулянта 1-го порядку з (12) отримали:

$$\chi_{01}(\varepsilon) = = \int_{t_{\min}}^{t_{\max}} \left[\chi_{01}(\varepsilon - t_{\lambda} - t) \cos(\theta(\varepsilon - t_{\lambda}, t)) + \lambda(\varepsilon) \right] \frac{d\sigma_n(\varepsilon - t_{\lambda}, t)}{\sigma_n(\varepsilon - t_{\lambda})},$$

в якому вказана явно залежність від енергій всіх величин. Оскільки $\lambda(\varepsilon)$ не залежить від втрат енергії *t*, то інтеграл від другого доданку легко знайти. В результаті маємо:

$$\chi_{01}(\varepsilon) = \int_{t_{\min}}^{t_{\max}} \left(\chi_{01}(\varepsilon - t_{\lambda} - t)\cos(\theta(\varepsilon - t_{\lambda}, t))\right) \frac{d\sigma_{n}(\varepsilon - t_{\lambda}, t)}{\sigma_{n}(\varepsilon - t_{\lambda})} + \lambda(\varepsilon).$$

Тепер використаємо означення сумарного перерізу пружного розсіяння із [3]: $\sigma_n(\varepsilon,t) = \int_t^{t_{max}} \sigma'_{n,t}(\varepsilon,\tau) d\tau$, з якого випливає, що $\sigma_n(\varepsilon,t)$ – спадаюча до нуля функція втраченої енергії; покладемо, що при мінімальній втраті енергії іон практично не відхиляється від прямолінійної траєкторії і тому $\theta(\varepsilon - t_\lambda, t_{\min}) = 0$; візьмемо до уваги означення довжини вільного пробігу $\lambda = \gamma / \sigma_n(\varepsilon - t_\lambda)$. Тоді, після інтегрування по частинах та деяких перетворень, рівняння для безрозмірного проективного пробігу набуває вигляду:

$$\chi_{01}(\varepsilon) = \chi_{01}(\varepsilon - t_{\lambda} - t_{\min}) + \frac{\lambda}{\gamma} \int_{t_{\min}}^{t_{\max}} \sigma_n(\varepsilon - t_{\lambda}, t) \frac{\partial}{\partial t} (\chi_{01}(\varepsilon - t_{\lambda} - t)\cos(\theta(\varepsilon - t_{\lambda}, t))) dt + \lambda$$

Оскільки максимальна втрачена енергія для пружних зіткнень $t_{\max} = \gamma (\varepsilon - t_{\lambda})$, то після ділення рів-

няння на λ і перегрупування доданків отримали рівняння у вигляді, зручному для аналітичних досліджень і чисельного розв'язку:

$$\frac{\chi_{01}(\varepsilon) - \chi_{01}(\varepsilon - t_{\min} - t_{\lambda})}{\lambda} - \frac{1}{\gamma} \int_{t_{\min}}^{\gamma(\varepsilon - t_{\lambda})} \sigma_n (\varepsilon - t_{\lambda}, t) \frac{\partial}{\partial t} \Big[\chi_{01}(\varepsilon - t - t_{\lambda}) \cos(\theta(\varepsilon - t_{\lambda}, t)) \Big] dt = 1.$$

За наведеним вище алгоритмом можна отримати безрозмірні рівняння для ерзацкумулянтів до заданого порядку N. Зокрема, для N = 4 вони мають наступний вигляд:

1) для першого порядку:

$$\hat{L}\chi_{0,1}(\varepsilon) = 1, \tag{19}$$

2) для другого порядку:

$$\hat{L}\chi_{0,2}(\varepsilon) = \frac{1}{\lambda} (\lambda^{2} - \chi_{0,1}^{2}(\varepsilon)) + \\
+ \hat{R} \{\chi_{0,1}^{2}(\varepsilon) P_{2}(v) + 2\lambda\chi_{0,1}(\varepsilon) P_{1}(v)\}, \\
L\chi_{2,0}(\varepsilon) = \frac{1}{\lambda} (\lambda^{2} - \chi_{0,1}^{2}(\varepsilon)) + \\
+ \hat{R} \{\chi_{0,1}^{2}(\varepsilon) + 2\lambda\chi_{0,1}(\varepsilon) P_{1}(v)\},$$
(20)

3) для третього порядку:

$$\hat{L}\chi_{0,3}(\varepsilon) = \frac{1}{\lambda} \Big(\lambda^{3} - \chi_{0,1}^{3}(\varepsilon) - 3\chi_{0,1}(\varepsilon)\chi_{0,2}(\varepsilon)\Big) + \hat{R}\Big\{\chi_{0,1}^{3}(\varepsilon)P_{3}(v) + 3\chi_{0,1}(\varepsilon)\chi_{0,2}(\varepsilon)P_{3}(v) + 3\lambda\chi_{0,2}^{2}(\varepsilon)P_{2}(v) + 3\lambda\chi_{0,1}^{2}(\varepsilon)P_{2}(v) + 3\lambda^{2}\chi_{0,1}(\varepsilon)P_{1}(v)\Big\},$$

$$\hat{L}\chi_{2,1}(\varepsilon) = \frac{1}{\lambda} \Big(\lambda^{3} - \chi_{0,1}^{3}(\varepsilon) - \frac{4}{3}\chi_{0,1}(\varepsilon)\chi_{0,2}(\varepsilon) - \frac{5}{3}\chi_{0,1}(\varepsilon)\chi_{2,0}(\varepsilon)\Big) + \hat{R}\Big\{\frac{5}{3}\lambda\chi_{2,0}(\varepsilon) + \chi_{0,1}^{3}(\varepsilon)P_{3}(v) + \frac{5}{3}\lambda\chi_{0,1}^{2}(\varepsilon) + \frac{4}{3}\lambda\chi_{0,2}(\varepsilon)P_{2}(v) + \frac{4}{3}\lambda\chi_{0,1}^{2}(\varepsilon)P_{2}(v) + 3\lambda^{2}\chi_{0,1}(\varepsilon)P_{1}(v) + \frac{4}{3}\chi_{2,0}(\varepsilon)\chi_{0,1}(\varepsilon)P_{1}(v)\Big\},$$

$$(21)$$

4) для четвертого порядку:

$$\begin{split} \hat{L}\chi_{0,4}(\varepsilon) &= \frac{1}{\lambda} \Big(\lambda^4 - \chi_{0,1}^4(\varepsilon) - 4\chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,3}(\varepsilon) - 3\chi_{0,2}^2(\varepsilon) \Big) + \hat{R} \Big\{ 6\lambda^2 \chi_{0,1}^2(\varepsilon) P_2(v) + \\ &+ 6\lambda^2 \chi_{0,2}(\varepsilon) P_2(v) + 6\chi_{0,1}^2(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) P_4(v) + 4\lambda \chi_{0,3}(\varepsilon) P_3(v) + 4\lambda \chi_{0,1}^3(\varepsilon) P_3(v) + \\ &+ 12\lambda \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) P_3(v) + 4\chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,3}(\varepsilon) P_4(v) + \chi_{0,1}^4(\varepsilon) P_4(v) + 3\chi_{0,2}^2(\varepsilon) P_4(v) \Big\}, \\ \hat{L}\chi_{2,2}(\varepsilon) &= \frac{1}{\lambda} \Big(\lambda^4 - \chi_{0,1}^4(\varepsilon) - \frac{7}{3} \chi_{0,1}^2(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) - \frac{14}{5} \chi_{0,1}^2(\varepsilon) \chi_{2,1}(\varepsilon) - \frac{2}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) - \frac{7}{3} \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) - \\ &- \frac{11}{3} \chi_{0,1}^2(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) - \frac{6}{5} \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,3}(\varepsilon) \Big) + \hat{R} \Big\{ \chi_{0,1}^4(\varepsilon) P_2(v) + \frac{7}{3} \lambda^2 \chi_{2,0}(\varepsilon) + \frac{7}{3} \lambda^2 \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) - \\ &- \frac{11}{3} \chi_{0,1}^2(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) - \frac{6}{5} \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,3}(\varepsilon) \Big) + \hat{R} \Big\{ \chi_{0,1}^4(\varepsilon) P_2(v) + \frac{7}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) + \\ &+ \frac{2}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) P_2(v) - \frac{7}{3} \chi_{0,1}^2(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) - \frac{14}{5} \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{2,1}(\varepsilon) - \frac{7}{3} \chi_{0,2}(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) + \\ &+ \frac{45}{15} \lambda \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) P_1(v) + \frac{14}{3} \lambda \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) P_1(v) + \frac{7}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) P_2(v) + \\ &+ \frac{14}{5} \chi_{2,1}(\varepsilon) P_1(v) + \frac{7}{3} \chi_{0,2}(\varepsilon) \chi_{2,0}(\varepsilon) P_2(v) + \frac{6}{5} \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) P_3(v) + 4\lambda^3 \chi_{0,1}(\varepsilon) P_1(v) + \\ &+ \frac{14}{3} \lambda^2 \chi_{0,1}(\varepsilon) P_2(v) + \frac{11}{3} \lambda^2 \chi_{0,2}(\varepsilon) P_2(v) + \frac{6}{5} \lambda \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) P_3(v) + 4\lambda^3 \chi_{0,1}(\varepsilon) P_1(v) + \\ &+ \frac{14}{3} \lambda^2 \chi_{0,1}(\varepsilon) P_2(v) + \frac{11}{3} \lambda^2 \chi_{0,2}(\varepsilon) P_2(v) + \frac{6}{5} \lambda \chi_{0,3}(\varepsilon) P_3(v) + \frac{6}{5} \lambda \chi_{0,1}^3(\varepsilon) P_3(v) \Big\}, \\ \hat{L}\chi_{4,0}(\varepsilon) &= \frac{1}{\lambda} \Big(\lambda^4 - \chi_{0,1}^4(\varepsilon) - \frac{4}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) - \frac{5}{3} \chi_{2,0}^2(\varepsilon) - \frac{10}{3} \chi_{0,1}^2(\varepsilon) P_2(v) + \frac{8}{3} \lambda^2 \chi_{0,2}^2(\varepsilon) P_2(v) + \\ &+ \hat{R} \Big\{ 4\lambda \chi_{0,1}^3(\varepsilon) P_1(v) + 4\lambda^3 \chi_{0,1}(\varepsilon) P_1(v) + \frac{8}{3} \lambda^2 \chi_{0,1}^2(\varepsilon) P_2(v) + \\ &+ \hat{R} \Big\{ 4\lambda \chi_{0,1}^3(\varepsilon) P_1(v) + \frac{5}{3} \chi_{2,0}^2(\varepsilon) - \chi_{0,1}^4(\varepsilon) + 4\lambda \chi_{2,1}^2(\varepsilon) P_1(v) + \frac{4}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) P_2(v) + \\ &+ \frac{16}{3} \chi_{0,1}(\varepsilon) \chi_{0,2}(\varepsilon) P_1(v) + \frac{5}{3} \chi_{2,0}^2(\varepsilon) - \chi_{0,1}^4(\varepsilon) P_1(v) + \frac{4}{3} \chi_{0,2}^2(\varepsilon) P_1(v) + \\ &+ \frac{16}{3} \chi_$$

Тут для інтегральних операторів у лівій і правій частинах використали наступні означення:

$$\hat{L}\chi_{k,m}(\varepsilon) = \frac{1}{\lambda} \Big[\chi_{k,m}(\varepsilon) - \chi_{k,m}(\varepsilon - t_{\lambda})\Big] - \frac{1}{\gamma} \int_{0}^{\gamma(\varepsilon - t_{\lambda})} \sigma(\varepsilon - t_{\lambda}, t) \frac{\partial}{\partial t} \Big[\chi_{k,m}(\varepsilon - t_{\lambda} - t)P_{m}(v)\Big] dt,$$

$$\hat{R} \Big\{\chi_{k,m}(\varepsilon)P_{l}(v)\Big\} = \frac{1}{\lambda}\chi_{k,m}(\varepsilon - t_{\lambda}) - \frac{1}{\gamma} \int_{0}^{\gamma(\varepsilon - t_{\lambda})} \sigma(\varepsilon - t_{\lambda}, t) \frac{\partial}{\partial t} \Big[\chi_{k,m}(\varepsilon - t_{\lambda} - t)P_{l}(v)\Big] dt,$$
(23)

де $P_m(v)$ – поліном Лежандра порядку m – від косинуса кута розсіяння $v = \cos(\theta(\varepsilon - t_\lambda, t))$, а найменшу енергію t_{\min} , втрачену у пружному зіткненні, поклали рівною нулю, оскільки внесок інтервалу $[0, t_{\min}]$ в інтеграл малий. Тому нижня межа інтегралу ядерного розсіяння рівна нулю, $\cos(\theta(\varepsilon - t_\lambda, t_{\min})) = 1$ і

$$P_l(\nu(\varepsilon - t_\lambda, t_{\min})) = 1$$
для всіх l .

Видно, що інтегральні рівняння (19-23) для кумулянтів кожного порядку незалежні між собою, бо в лівій частині кожного з них є лише один ерзацкумулянт найвищого порядку, а у правій – лише ерзацкумулянти нижчого порядку. Підкреслимо також, що перший доданок в операторі правої частини, а саме $\chi_{k,m} (\varepsilon - t_{\lambda})/\lambda$, разом з доданками типу $\chi_{k,m} (\varepsilon)$, при граничному переході $\lambda \to 0$ утворюють різноманітні комбінації похідної від $\chi_{k,m} (\varepsilon)$.

Дослідження і обговорення. Проведемо дослідження для двох граничних випадків: 1) малої середньої довжини вільного пробігу $\lambda \to 0$; 2) великого її значення $\lambda \to \infty$.

Згідно означення, втрата енергії на довжині вільного пробігу визначається як $T_{\Lambda}(E) = \int_{0}^{\Lambda} S_e(E(s)) ds$, де $S_e(E)$ – електронне гальмування іона з енергією E [8, 1]. Звідси видно, що при $\Lambda \to 0$ справедливо $T_{\Lambda} \approx \Lambda S_e(E)$, а тому в рівнянні (3) врахуємо залежність від Λ всіх членів, а також умову $\vec{u} \equiv \vec{k}$ і розкладемо функцію $\Pi(E, \vec{u}, \vec{r})$ в ряд до другого порядку включно по величині Λ . Після алгебраїчних операцій, з використанням співвідношення $\Lambda \sigma_n = 1/N$, отримаємо:

$$\vec{u} \cdot \vec{\nabla} \Pi(E, \vec{u}, \vec{r}) - N \int_{T_{min}}^{T_{max}} \int_{0}^{2\pi} \{\Pi(E'', \vec{u}', \vec{r}) - \Pi(E, \vec{u}, \vec{r})\} d\sigma_{n} \frac{d\beta}{2\pi} + NS_{e}\Pi'_{E}(E, \vec{u}, \vec{r}) = \\ = -\Lambda N \int_{T_{min}}^{T_{max}} \int_{0}^{2\pi} \{[\Pi'_{i}(E'', \vec{u}', \vec{r}) - \Pi'_{i}(E, \vec{u}, \vec{r})] u_{i} - [\Pi'_{E}(E'', \vec{u}', \vec{r}) - \Pi'_{E}(E, \vec{u}, \vec{r})] S_{e}\} d\sigma_{n} \frac{d\beta}{2\pi} -$$

$$-\frac{\Lambda_{2}}{2} N \int_{T_{min}}^{T_{max}} \int_{0}^{2\pi} \{\Pi''_{E^{2}}(E'', \vec{u}', \vec{r}) [NS_{e}]^{2} + \Pi''_{ij}(E'', \vec{u}', \vec{r}) u_{i}u_{j} + 2\Pi''_{iE}(E'', \vec{u}', \vec{r}) u_{i}NS_{e}\} d\sigma_{n} \frac{d\beta}{2\pi} + O(\Lambda_{3}/\Lambda),$$

$$(24)$$

де $\Lambda = \int_0^\infty f_1(l) l dl$, $\Lambda_2 = \int_0^\infty f_1(l) l^2 dl$, а штрихом позначена похідна по змінній, яка вказана індексом, причому замість координати вектора показано її індекс, $E'' = E - T_n$ енергія іона після пружного розсіяння. Після граничного переходу $\Lambda \to 0$ і $\Lambda_2 \to 0$ такого, що $\Lambda_2/\Lambda \to 0$ отримаємо рівняння:

$$\vec{u} \cdot \vec{\nabla} \Pi \left(E, \vec{u}, \vec{r} \right) =$$

$$= N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \int_{0}^{2\pi} \left\{ \Pi \left(E - T_n, \vec{u}', \vec{r} \right) - \Pi \left(E, \vec{u}, \vec{r} \right) \right\} d\sigma_n \frac{d\beta}{2\pi} - (25)$$

$$s - N S_e \Pi'_E \left(E, \vec{u}, \vec{r} \right)$$

яке отримане у теорії ЛШШІ [1, 8]. Отже воно є окремим випадком рівняння (3) коли іон має часті пружні зіткнення і довжина його вільного пробігу до першого пружного розсіяння мала у порівнянні із характерною довжиною R^* , яка має порядок сотень ангстрем для всіх можливих комбінацій іонів і твердих мішеней. 2) Тепер дослідимо рівняння при $\lambda \to \infty$. У цьому випадку логічним буде припущення $t_{\lambda} \to \varepsilon$, тобто іон майже не зазнає ядерних зіткнень і втрачає майже всю енергію у електронних зіткненнях. Домножимо рівняння (19) на λ і використовуючи умову $\lambda = \gamma / \sigma_n (\varepsilon - t_{\lambda})$ отримаємо:

$$\chi_{0,1}(\varepsilon) - \chi_{0,1}(\varepsilon - t_{\lambda}) - \int_{0}^{\gamma(\varepsilon - t_{\lambda})} \frac{\sigma(\varepsilon - t_{\lambda}, t)}{\sigma(\varepsilon - t_{\lambda})} \frac{\partial}{\partial t} \Big[\chi_{0,1}(\varepsilon - t_{\lambda} - t) P_{1}(v) \Big] dt = \lambda.$$
⁽²⁶⁾

Оскільки функції під інтегралом обмежені, а верхня межа прямує до нуля, то інтегралом можна знехтувати як малою величиною в порівнянні з λ . Це дає наближений вираз для проективного пробігу:

$$\chi_{0,1}(\varepsilon) \approx \lambda + \chi_{0,1}(\varepsilon - t_{\lambda}) \to \lambda , \qquad (27)$$

оскільки $\chi_{0,1}(\varepsilon) \to 0$ при $\varepsilon \to 0$. Аналогічним чином, нехтуючи інтегралом ядерних зіткнень в (20) і використовуючи (27), можна показати що:

$$\chi_{0,2}(\varepsilon) \approx 0, \quad \chi_{2,0}(\varepsilon) \approx 0.$$
 (28)

Отримані результати означають, що за відсутності ядерних зіткнень, коли $\lambda \to \infty$, іони рухаються прямолінійно до повної зупинки після пробігу довжини λ , без жодних флуктуацій пробігу. Тоді (4) дає просторову функцію розподілу у вигляді дельта-функції.

Висновки та результати. Рівняння просторового розподілу імплантованих іонів як обернене рівняння переносу Больцмана вдалося вивести у такій формі, яка допускає дослідження в рамках кумулянтного підходу. Хоча виявилося, що для нього можна ввести різні параметри розподілу, проте серед них завжди є й ті, які є єдиними в теорії ЛШШ, тому саме ними і варто скористатися.

У випадку домінування ядерних зіткнень над електронним гальмуванням отримані рівняння переходять в рівняння теорії ЛШШ. У протилежному випадку вони допускають аналітичний розв'язок, який має фізичну інтерпретацію. Тому слід очікувати, що ці рівняння точніші ніж рівняння теорії ЛШШ для просторового розподілу іонів при високоенергетичній імплантації, коли електронне гальмування домінує. Практична важливість отриманих рівнянь полягає у тому, що їх тепер можна дослідити методом, розвинутим у роботах [6,7,2], який придатний і для високих енергій, на відміну від методу [4, 5].

1. Буренков А.Ф., Комаров Ф.Ф., Кумахов М.А., Темкин М.М. Пространственные распределения энергии, выделенной в каскаде атомных столкновений в твердых телах. Минск: Энергоатомиздат, 1985. 248 с. 2. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Классическая механика. – М.: Наука, 1973. – 208 с. 3. Макарець М.В., Сторчака С.М. Новий метод розрахунку розподілу імплантованих іонів. Укр. Фіз. Журн., 2001, т. 46, № 4, с. 486-494. 4. Bowyer M.D.J., Ashworth D.G., Oven R. A generalized transport equation for ion implantation into infinite targets. Journal of Physics D: Applied Physics, Volume 27, Issue 12, pp. 2592-2600 (1994). 5. Bowyer M.D.J., Ashworth D.G., Oven R. A transport equation model that is consistent with Monte-Carlo simulations of ion implantation into infinite targets. J. Phys: Condens. Matter, 1993, v. 5, p. 2157-2170. 6. Ilyina V.V. Makarets M.V. Distribution of energy losses by fast ions along their propagation paths in solids. – Ukr. J. Phys., 2010, v. 55, N 2, p. 235–242. 7. *Ilyina V.V.* Makarets M.V. The cumulants analysis of the implanted ions distribution // Ukr. Phys. J., 2004, v. 49, № 8, p. 815–823. 8. Lindhard J., Scharf M., Schiøtt H.E. Range Concepts and Heavy Ion ranges (Notes on Atomic Collisions, II) // Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-fys. Medd. – 1963. – Vol. 33, № 14. – P. 1 – 52. 9. Ziegler J.E. The Stopping of Energetic Light lons in Elemental Matter // Appl. Phys. Rev. / J. Appl. Phys. - 1999. - Vol. 85. - P. 1249-1272. Надійшла до редколегії 10.12.10

УДК 535.323

В. Прокопець, канд фіз.-мат. наук, асист., І. Лісова, студ., Є. Рафаловський, студ.

МОДЕЛЮВАННЯ ОПТОВОЛОКОННОГО СЕНСОРА ПАРІВ ОРГАНІЧНИХ РОЗЧИННИКІВ НА ОСНОВІ РОЗПОДІЛЕНОГО БРЕГІВСЬКОГО РЕФЛЕКТОРА

Розглянуто розподіленний брегівський рефлектор на базі композиту тефлону з наночастинками золота. Розраховано теоретичну криву коефіцієнта відбивання рефлектора та допустимі похибки товщин плівок при виготовленні.

Disturbed Bragg reflector based on gold nanoparticle/Teflon-like composite material was considered. The theoretical curvature of reflection index and permissible accuracy of layer thickness were calculated.

Вступ. Створення елементів, чутливих до хімічних сполук, зокрема до сполук, шкідливих для здоров'я людини, є актуальним завданням для багатьох областей виробництва. Одним з можливих шляхів розв'язку цієї задачі є поєднання стандартних оптоволоконних технологій та чутливих елементів на основі нанокомпозитних сполук. В якості чутливого елементу оптоволоконного сенсора парів летких розчинників пропонується до розгляду полімерний розподілений брегівський рефлектор на базі композиту тефлону з наночастинками золота.

Тефлон є хімічно інертним та абсолютно нерозчинним, але наявність металевих кластерів значно підвищує його здатність до абсорбції парів летких речовин. Полімер розподіленого брегівського рефлектора абсорбує молекули парів і розбухає, товщина його шарів збільшується, період рефлектора змінюється, а отже, зміщується і максимум його відбивання, що може бути зареєстровано світлочутливим елементом [3].



а – до експозиції у парах леткого розчинника; б – після експозиції Розподілений брегівський рефлектор – періодична структура, що складається з тонких плівок з високим та низьким показником заломлення. Схематично структура зображена на рис. 1.

В якості матеріалів для рефлектора розглянуто композит тефлону з вкрапленнями наночастинок золота (об'ємна частка золота 0,18) як матеріал з високим коефіцієнтом відбивання (n~1,7 в інфрачервоній ділянці спектру) та власне тефлону (n~1,3 в цій же ділянці спектру) як матеріал з нижчим коефіцієнтом відбивання.

Для розрахунку показника заломлення композиту тефлону з наночастинками золота використано теорію ефективного середовища Максвелла-Гарнета [2]. Згідно з нею, ефективна діелектрична проникність композиту розраховується з формулою:

$$\varepsilon_e = \varepsilon_2 \frac{\varepsilon_1 (1+2p) + 2\varepsilon_2 (1-p)}{\varepsilon_1 (1-p) + \varepsilon_2 (2+p)}, \tag{1}$$

де ε_1 – діелектрична проникність матеріалу включень, ε_2 – діелектрична проникність матеріалу матриці, $p = V_1 / V_2$ – об'ємна частка включень.

Враховуючи, що для інфрачервоного діапазону ($\lambda = 1,4$ мкм) діелектрична проникність золота $\varepsilon_1 = -125.35$, тефлону – $\varepsilon_2 = 1.69$ [4], за формулою (1) знайдемо діелектричну проникність композиту ε_e і показник заломлення:

$$n_e = \sqrt{\varepsilon_e} = 1.69$$

Розрахунок залежності коефіцієнта відбивання від довжини хвилі падаючого випромінюваняня. Рефлектор має наступну структуру: чотири пари шарів тефлону з наночастинками золота та тефлону, напилені на скляній підкладинці. Товщина шару тефлону з вкрапленнями наночастинок золота – 242 нм, тефлону – 312 нм. Товщина підкладинки – 0,3 мм.

Розрахунки спектрів відбивання проведено матричним методом [1], вважаючи, що речовина, яка абсорбується, не вносить значних змін у показник заломлення шару, а змінює лише її товщину.

Згідно з цим методом, загальна характеристична матриця шаруватої системи тонких плівок є добутком характеристичних матриць кожного окремого шару.

$$M = M_1 M_2 M_1 M_2 M_1 M_2 M_1 M_2 M_n,$$
 (2)

де M – матриця рефлектора, M_1 – матриця шару композиту тефлону з наночастинками золота, M_2 – матриця шару тефлону, M_n – матриця підкладинки.

Характеристична матриця для діелектричної плівки має вигляд [1]:

$$M_{j} = \begin{bmatrix} \cos(\beta) & -\frac{i}{p_{j}}\sin(\beta) \\ -ip_{j}\sin(\beta) & \cos(\beta) \end{bmatrix},$$
 (3)

Де $\beta = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_j h_j \cos(\theta_j)$, $p_j = n_j \cos(\theta_j)$, n_j – показник

заломлення плівки, θ_j – кут падіння світла на межу поділу плівка-середовище, λ_0 – довжина хвилі падаючого випромінення.

В нашому випадку розглядаємо нормальне падіння, тобто $\theta_i = 0$. Матриці плівок набувають вигляду:

$$M_{j} = \begin{bmatrix} \cos(\frac{2\pi}{\lambda_{0}}n_{j}h_{j}) & -\frac{i}{n_{j}}\sin(\frac{2\pi}{\lambda_{0}}n_{j}h_{j}) \\ -in_{j}\sin(\frac{2\pi}{\lambda_{0}}n_{j}h_{j}) & \cos(\frac{2\pi}{\lambda_{0}}n_{j}h_{j}) \end{bmatrix}, \quad (4)$$

Коефіцієнт відбивання розраховується за формулою [1]:

$$R = \left| \frac{(m_{11} + m_{12} p_0) p_0 - (m_{21} + m_{22} p_0)}{(m_{11} + m_{12} p_0) p_0 + m_{21} + m_{22} p_0} \right|^2,$$
(5)

де m_{ij} – елементи загальної матриці, $p_0 = n_0 \cos \theta_0$, n_0 – показник заломлення середовища, в якому знаходиться рефлектор, θ_0 – кут падіння світла не рефлектор.

В нашому випадку $n_0 = 1$, $\theta_0 = 0$, $p_0 = 1$ і формула (5) зводиться до такого вигляду:

$$R = \left| \frac{(m_{11} + m_{12}) - (m_{21} + m_{22})}{m_{11} + m_{12} + m_{21} + m_{22}} \right|^2.$$
 (6)

Використовуючи експериментальні дані експозиції композиту у парах ацетону [3] при молярній долі парів ацетону $\chi = 0,25$, можна розрахувати зсув максимуму відбивання. Розрахунки проведено з використанням програмного пакету Maple 12 компанії MapleSoft.

Результати розрахунків коефіцієнту відбивання за формулою (6) до та після експозиції в парах ацетону наведено на рис. 2. Спостерігається зміщення максимуму відбивання в довгохвильову область. Спектральну залежність різниці коефіцієнтів відбивання до та після експозиції зображено на рис. 3. Як видно з представлених графіків, при фіксованому λ показник відбивання рефлектора, поміщеного в середовище з парами ацетону, змінюється. За величиною його зміни можна робити висновок про величину концентрації парів ацетону.



В І С Н И К Київського національного університету імені Тараса Шевченка



Рис. 3. Теоретично розрахована залежність зміни коефіцієнта відбивання при молярній частці парів ацетону <u>х</u> = 0,25

Розрахунок допустимих відхилень товщин шарів плівок при виготовленні. Розглянута структура брегівського рефлектора може бути виготовлена методом вакуумного напилення. Оскільки напилення може бути здійснене з різною точністю товщин шарів, виникає потреба оцінити допустимі похибки товщин шарів при виготовленні і знайти максимальне значення відносної похибки, за якого сенсор ще не втрачае лінійної передавальної характеристики.

Використовуючи значення зміни товщини плівок композиту тефлону з наночастинками золота при різних значеннях концентрації ацетону [3], теоретично розраховано залежність зміни коефіцієнту відбивання від концентрації парів ацетону для товщин шарів композиту 242 нм та товщин шарів тефлону 312 нм (рис. 4), а також для відхилень від цих значень на 1, 2, 3 та 4 % (рис. 5). При розрахунках вважаемо, що товщина скляної підкладки – 0,3 мм.



Рис. 4. Теоретично розрахована залежність зміни коефіцієнта відбивання від концентрації ацетону

Залежність зміни коефіцієнту відбивання від концентрації парів ацетону розраховувалось для значень молярної частки ацетону в діапазоні 0–0,25. Якщо концентрація більша, ніж 0,3, спостерігається насичення і пари розчинника більше не абсорбується.

Для побудови залежності зміни коефіцієнта відбивання від концентрації було обрано довжину хвилі 1,4 мкм. На цій довжині хвилі крива різниці коефіцієнтів відбивання досягає максимуму за найбільшого зміщення, а, отже, зміну зареєструвати найлегше. Для реалізації такої системи можна використати лазери і лазерні модулі, які використовують в системах оптоволоконного зв'язку і випромінюють із довжиною хвилі спектрального діапазону 1,21-1,68 мкм із напівшириною спектральної смуги $\Delta \lambda = 2$ нм. [5]

При зміні товщин плівок на 4% (рис. 5а) спостерігається значне відхилення від лінійності (~10%) та зменшення різниці коефіцієнтів відбивання вдвічі.

Отже, для забезпечення лінійної передавальної характеристики межі похибки товщини шарів плівок при виготовленні не повинні перевищувати 3 % (± 9 нм).



Рис. 5. Теоретично розрахована залежність зміни коефіцієнта відбивання від концентрації ацетону при відхиленнях товщин плівок величиною: a – 1 %; б – 2 %; в – 3 %; г – 4 %

Висновки Розраховано модель хімічного сенсора парів летких речовин - розподілений брегівський рефлектор, що базується на композиті тефлону з вкрапленнями наночастинок золота. Сенсор працює в діапазоні довжин хвиль оптичного зв'язку, а, отже, може бути легко під'єднаний до оптоволокна. Завдяки ефекту розбухання композиту у середовищі з парами летких речовин такий сенсор може бути використаний для реєстрації та детектування парів органічних розчинників.

Проведена оцінка допустимих похибок товщин шарів брегівського рефлектора, при яких передавальна характеристика є лінійною. Відносна похибка товщини шарів плівок рефлектора при виготовленні повинні не перевищувати 3 %. 1. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. –и 2. – М.: Наука, 1973. 2. Проколець В.М., Шайкевич І.А., Робур Л.Й. Моделювання оптичних властивостей гетерофазних керамічних матеріалів SiC + AlN за допомогою теорії Бругмена. // Наукові записки. Фізико-математичні науки. – 2003. – т. 21. 3. Convertino A., Capobianchi A., Valentini A., Cirillo E.A New Approach to Organic Solvent Detection: High-Reflectivity Bragg Reflectors Based on a Gold Nanoparticle/Teflon-like Composite Material // Adv. Mather. – 2003. – 15, No. 13. 4. Johnson P.B., Christy R.W. Optical constants in Noble Metals // Phys. Rev. B. – 1972. – v. 6, 12. – P. 4370–4379. 5 http://telam.ru/ Надійшла до редакції 10.02.11 УДК 548.4; 548.0:539.3.8

Л. Стебленко, д-р фіз.-мат. наук, ст. наук. співр., А. Курилюк, інж., С. Науменко, пров. інж., О. Кріт, асп., О. Руденко, канд. фіз.-мат. наук, наук. співр.

ВПЛИВ СКЛАДУ АТМОСФЕРИ НА СТАБІЛЬНІСТЬ МАГНІТОМЕХАНІЧНОГО ЕФЕКТУ

В роботі вивчаються особливості поведінки магнітомеханічного ефекту (стимульованого магнітним полем ефекту зміни мікротвердості) в залежності від складу кисневомісткої атмосфери. Показано, що при зменшенні вологості повітря до нуля досліджуваний ефект стабілізується, швидкість релаксації ефекту суттєво зменшується.

The features of magnetomechanical effect behavior (effect of microhardness change in magnetic field) depending on oxygen atmosphere structure are studied. It is shown that at reduction of air humidity to zero the investigated effect is stabilized, speed of effect relaxation essentially decreases.

Вступ. За останні 20 років в літературі накопичено достатньо великий об'єм експериментальних фактів впливу слабких магнітних полів на структуру та фізичні властивості немагнітних матеріалів [1, 4, 7, 8, 12, 13]. При цьому особливу чутливість до магнітного поля проявляють дефектні місця в кристалах, зокрема, поверхня.

Існує декілька механізмів, які пояснюють природу магнітостимульованих змін в діамагнітних матеріалах. Зокрема, припускається, що магнітне поле викликає спін-залежні процеси в підсистемі структурних дефектів, які призводять до того, що середня енергія зв'язку в комплексах точкових дефектів зменшується, хімічні зв'язки розриваються. В той же час в контексті вивчення магніточутливих явищ в магнітоневпорядкованих матеріалах існують певні прогалини, а пропонований механізм пояснення магнітоіндукованих ефектів в слабомагнітних матеріалах, ще залишається далеким від свого остаточного вирішення.

З врахуванням практичної значимості кремнію для сучасної мікроелектроніки, питома вага наукової інформації про магнітостимульовану зміну структури та структурно-залежних властивостей слабомагнітного кремнію є невиправдано малою.

В [9] було виявлено, що під впливом магнітного поля (МП) в кристалах кремнію спостерігається зміна мікротвердості, яку можна класифікувати як магнітомеханічний ефект (ММЕ). Була встановлена характерна особливість ММЕ, яка полягає в тому, що ММЕ з часом витримки зразків на повітрі (в кисневомісткому середовищі) швидко (через 5 діб) релаксує.

В роботі [11] було показано, що швидкість релаксації ММЕ суттєво зменшується після витримки зразків Si у вакуумі. Отже, склад середовища впливає на тривалість існування ММЕ. Цікаво було дослідити такий аспект складу кисневого середовища як його вологість.Відомо, що ексікатор забезпечує 0 % вологість повітря, яке в ньому міститься. В зв'язку з вищезазначеним, метою даної роботи було дослідження стабільності магнітомеханічного ефекту в умовах витримки зразків Si в кисневій атсмосфері, позбавленій вологості.

Методика експерименту. В роботі використовувались зразки Si n-типу, вирощені по методу Чохральського, леговані фосфором до питомого опору $\rho = 4,5$ Ом см. Зразки мали кристалографічну орієнтацію поверхні {111}. Магнітна обробка (МО) зразків кремнію здійснювалась шляхом їх витримки протягом 7 діб у постійному магнітному полі (МП) з індукцією $B = 0,17 \text{ T}_{\pi}$. Витримка зразків Si в ексікаторі, яка використовувалась в роботі, розглядалась як своєрідна "обробка" зразків кремнію в кисневій атмосфері, позбавленій вологості. Назвемо умовно цю обробку обробкою в ексікаторії (OE). Схема експерименту передбачала три варіанти обробки зразків Si: 1) обробка типу МО+ОЕ – витримка зразків у МП і наступна після МО витримка в ексікаторі; 2) обробка типу ОЕ+МО – витримка зразків в ексікаторі і послідуюча дія після цієї витримки МО; 3) МО зразків Si під час знаходження в ексікаторі.

Відгуком на здійснні обробки зразків креміню слугувала мікротвердість, виміри якої здійснювались на мікротвердомірі ПМТ-3. Окремо проводився експеримент по визначенню зміни мікротвердості після витримки зразків кремнію в ексікаторі.

Змінена в результаті використаних в роботі обробок мікротвердость порівнювалась з мікротвердістю контрольних зразків кремнію, які не проходили відповідних обробок. На основі цього порівняння розраховувалась величина відносної мікротвердості, похибка у визначенні якої складала 4 %.

Експериментальні результати та їх обговорення. Проведені дослідження дозволили встановити наступні експериментальні факти.

По-перше, витримка зразків кремнію в ексікаторі призводить до ефекту зменшення мікротвердості, величина якого досягає ~ 13 % (рис. 1). Як видно з рис. 1, виявлений ефект з часом релаксує. По-друге, подвійна обробка, яка полягала в поєднанні магнітної обробки і "обробки" зразків Si в ексікаторі, незалежно від послідовності комбінування обробок, приводила до однакових ефектів, які полягали у гальмуванні релаксації ММЕ, та появі залишкового ММЕ, величина якого складала ~ 10 % (рис. 2). Тобто, застосування комбінованих обробок приводило до пролонгації ММЕ. I, нарешті, третій, виявлений в роботі експериментальний факт засвідчив наступне. МО зразків Si, яка здійснювалась безпосередньо в кисневому середовищі, позбавленому вологості (в ексікаторі) також супроводжувалась пролонгацією ММЕ (рис. 3).





© Стебленко Л., Курилюк А., Науменко С., Кріт О., Руденко О., 2011







Рис. 3. Залежність відносної мікротвердості зразків кремнію від часу, що пройшов після завершення магнітної обробки в вологому ккисневому середовищі – 1, в середовищі, позбавленому вологості – 2 та після завершення самостійної МО; H₀ – мікротвердість контрольних зразків Si; H – мікротвердість зразків Si після використаних обробок; час MO в ексікаторі t_{MO} = 7 діб, час самостійної MO t_{MO} = 7 діб

Для пояснення одержаних результатів можна запропонувати наступні фізичні механізми.

Зменшення мікротвердості зразків кремнію в результаті їх витримки в ексікаторі може бути пов'язане зі зменшенням товщини природньої окисної плівки, притаманної поверхні Si. Причиною такого зменшення є випаровування та дисоціація в кисневомісткому середовищі, позбавленому вологості, слідів (молекул) води, які завжди присутні в окисній плівці, та, імовірно, дисоціація молекулярного кисню, який як правило, адсорбується природною окисною плівкою з оточуючої атмосфери.

З нашої точки зору, ще одна можлива причина зменшення мікротвердості в процесі витримки зразків Si в ексікаторі пов'язана з явищем гідрофільності. Автор монографії [3] відзначає, що методики створення гідрофільних поверхонь засновані на реакції гідратації, тобто, на реакції Н⁺ або ОН⁻-груп з природним окислом. Згідно [3], після дисоціації (розпаду) молекул H₂O продукти розпаду взаємодіють з природним окислом відповідно до наступних реакцій:

> $(Si-O-Si) + OH^- \rightarrow (Si-OH) + (Si-O^-), (1)$ $(Si-O^-) + HOH^- \rightarrow (Si-OH) + OH^-, (2)$ $(Si-O-Si) + H^+ + HOH^- \rightarrow (2Si-OH) + H^+ (3)$

Іони Н⁺ та ОН⁻ визначають гідрофільність поверхні. Для одержання гідрофільних поверхонь кремнієвих пластин з метою досягнення максимальної сили зв'язку поверхню Si активують за допомогою різних обробок, зокрема, у вакуумі або за допомогою плазми [2, 14], а також за допомогою МП [6, 8]. З огляду на вищевикладене, можна припустити, наступне. Перебування зразків Si в ексікаторі (в позбавленому вологості кисневомісткому середовищі) призводить до декількох наслідків. По-перше, до дисоціації присутніх в поверхневій окисній плівці молекул води, а, по-друге, завдяки взаємодії продуктів розпаду з окисною плівкою – до утворення іонів H⁺ та OH⁻, і відповідно, до зростання гідрофільності поверхні кремнію.

З нашої точки зору, цілком можливим є міждефектні реакції, які протікають на гідрофільній, тобто, активованій під час перебування в ексікаторі поверхні, між продуктами розпаду молекул води – іонами H⁺ і OH⁻ та власними міжвузельними атомами - кремнію, кисню та ін. У результаті цих реакцій можливе утворення "нових" комплексів точкових дефектів (КТД). Якщо врахувати, що з міжвузельними дефектами пов'язані внутрішні напруження в кристалі, то зв'язування певної кількості міжвузельних атомів (Si_i, O_i) у "нові" комплекси приведе до зменшення внутрішніх напружень і, відповідно, до зниження мікротвердості. Утворені "нові" КТД є стійкими, про що свідчить досить тривала в часі стабільність ефекту зменшення мікротвердості (див. рис. 1). Як видно з рис.1, виявлений ефект релаксує ~ через 8 місяців після вилучення зразків з ексікатора.

Обов'язковими складовими реального окису є молекули H_2O , O_2 , іони H^+ , OH^- , HSi_nO_{2n+1} , а також атоми H і радикали OH, які знаходяться з ними в рівновазі. Природньо, що частинки, які містяться в порах окису (в першу чергу H^+ , OH^- , H, OH, O_2 , H_2O) можуть мати помітні коефіцієнти дифузії. Встановлена наявність рухомих іонів в окисній плівці, причому відповідні коефіцієнти дифузії деяких іонів можуть складати величину порядка (10^{-6} - 10^{-5}) см²/с.

В реальному окисі присутні хоча б дві підсистеми (протонна H⁺, H, i гідроксильна OH⁻,OH), які здатні перезаряджатись за рахунок електронного обміну з напівпровідником. Електрична нейтральність окису при такому електронному обміні буде порушуватись. Оскільки вказані частинки мають великі значення коефіцієнту дифузії, то електронний обмін може відбуватись безпосередньо на границі розділу окис-напівпровідник. Протонна і гідроксильна системи взаємозв'язані, при цьому концентрації іонів Н⁺ і ОН⁻ контролюються процесами дисоціації молекул гідрокису і води, а концентрації нейтральних частинок H i OH визначаються вмістом води і кисню в окисі [5]. При заданому складі атмосфери концентрації відповідних іонів і нейтральних частинок підтримуються майже постійними. На наш погляд, зміни складу оточуючої атмосфери викликають зміни в концентраціях іонів і нейтральних частинок.

З огляду на вищевикладені міркування, з'ясуємо тепер природу механізмів, які лежать в основі ефектів, виявлених як при комбінованих обробках зразків Si типу MO + EO та EO + MO, так і MO, яка здійснювалась безпосередньо в ексікаторі. Як уже зазначалось, при зазначених обробках мала місце пролонгація MME.

На наш погляд, експериментально встановлений факт пролонгації ММЕ, при комбінованих обробках можна пов'язати з двома обставинами. По-перше, як уже зазначалось, витримка в ексікаторі кристалів кремнію приводить до розпаду молекул води, які входять в структуру природної окисної плівки. По-друге, з літератури відомо, що МП активує поверхню кремнію і посилює на поверхні адсорбційні процеси [6, 8, 10]. Отже, поряд з процесами дегідратації та розпаду молекул води на поверхні кремнію протікають процеси, пов'язані з ростом хімічної активності. Не виключено, що магнітна активація поверхні стимулюватиме прискорене протікання міждефектних реакцій. В свою чергу, міждефектні реакції приводитимуть до того, що утворені при МО метастабільні А-подібні дефекти (киснево-вакансійні (O-V) комплекси) [7] зв'язуватимуться воднем і гідроксильними групами, які виникли при дисоціації молекул води. Подібна модифікація структури, на нашу думку, трансформує метастабільні А-подібні дефекти в стабільні структурні утворення, які не відпалюються протягом тривалого часу і, які призводять до "заморожування" ММЕ. Якщо прийняти до уваги те, що зміна у складі атмосфери приводить до зміни концентрації іонів і нейтральних частинок, то можна зробити наступні припущення. У складі атмосфери ексікатора, якій притаманна 0% вологість, домінують іони Н⁺, ОН⁻, які визначаються процесами дисоціації води. Іони Н⁺, ОН⁻, які адсорбуються на магнітоактивованій поверхні, створюють, на відміну від нейтральних частинок, стійку форму адсорбції [2]. Відповідно до цього більш стійкими виявляютьсяі продукти міждефектних реакцій, які і забезпечують стабільність (пролонгацію ММЕ).

Слід зазначити, що пролонгація MME спостерігалась не тільки, коли MO відбувалось безпосередньо в ексикаторі, тобто в середовищі, позбавленому вологості, але й у випадку тривалої MO зразків кремнію в вологому кисневомісткому середовищі. Дійсно, у вологому середовищі збільшення часу MO з 7 діб до 4 місяців приводило до подовження часу існування MME з 5 діб 30 діб.

Останнє може бути пов'язане з наступним. Як уже зазначалось, на поверхні Si існують два типи водневих і гідроксильних груп, пов'язаних з наявністю води в природному окислі.

Нагадаємо, що наявність однієї групи, а саме іонів Н⁺ та ОН⁻, визначається процесами дисоціації (в нашому випадку, імовірно, – фотодисоціації) води. Присутність другої групи, а саме, нейтральних атомів Н та ОН визначається вмістом молекул води і молекулярного кисню в природному окислі.

Не виключено, що вищезазначені фактори впливу, які зводяться до наявності заряджених і нейтральних водневих і гідроксильних груп є конкуруючими. При малих часах MO (7діб) домінує процес впливу нейтральних молекул H та OH на магнітоактивовану поверхню.

Адсорбція магнітоактивованою поверхнею Si нейтральних молекул H і OH приводить, згідно [2], до виникнення нейтральних форм адсорбції, які є нестійкими і з часом завдяки процесам десорбції зникають. В зв'язку з цим міждефектні реакції, які протікають на магнітоактивній поверхні між нейтральними молекулами H і OH, утвореними в результаті короткотривалої (7 діб) дії МП, призводять до виникнення нестабільних комплексів точкових дефектів. Останнє і призводить до існування нестабільного, короткотривалого ММЕ в звичайному вологому кисневомістковому середовищі. Імовірно, при великих часах MO (t_{MO} ≥ 4місяці) у вологому середовищі

відбувається поступове накопичення продуктів реакцій, пов'язаних з дисоціацією молекул води, і відповідне накопичення концентрації заряджених іонів H⁺ і OH⁻. Тривала МО приводить до того, що концентрація іонів, які адсорбуються магнітоактивованою поверхнею превалює над концентрацією нейтральних молекул H та OH. Відповідно, питома вага заряджених (стійких) форм адсорбції стає більшою за питому вагу нейтральних форм адсорбції. Це і забезпечує пролонгацію, тобто стабільність у часі MME у випадку тривалої (> 4 місяців) магнітної обробки у вологому кисневомісткому середовищі.

Поява стабільного, тривалого ММЕ, при здійсненні короткотривалої (7 діб) МО безпосередньо в ексікаторі (рис. 3), пов'язана зі зміною складу вологої атмосфери на суху. В сухій атмосфері посилюються процеси випаровування та дисоціації молекул води. Ці процеси призводять до наступних наслідків. Не виключено, що в процесі випаровування з поверхні зникають в першу чергу присутні в окислі нейтральні молекули Н і ОН, поскільки нейтральна форма адсорбованих молекул легко знімається з поверхні. В той же час, заряджена форма адсорбованих іонів H⁺ і ОН⁻, наявних на поверхні завдяки протіканню процесів фотодисоціації молекул води, залишається на поверхні як стійка форма, яка не десорбується без спеціальних впливів.

Наслідком процесів своєрідної дисоціативної адсорбції заряджених іонів та їх взаємодії з утвореними в МП метастабільними киснево-вакансійними (O–V) комплексами є утворення стабільних КТД. Утворення стабільної структури приводить до пролонгації ММЕ у випадку короткотривалої (7 діб) МО зразків Si, яка відбувається безпосередньо в ексікаторі.

1. Альшиц В.И., Даринская Е.В., Козакова О.Л. Магнитопластический эффект в облученных кристаллах NaCl и LiF. // ЖЭТФ. - 1997. – Т. 111, № 2. – С. 615–626. 2. Бару В.Г., Волькенштейн Ф.Ф. Влияние облучения на поверхностные свойства полупроводников. М: Наука. 1978, 288 с. З. Вавилов В.С., Киселев В.Ф., Мукашев Б.Н. Дефекты в кремнии и на его поверхности. – М.:Наука, 1990. – 216 с. 4. Головин Ю.И. Магнитопластичность твердых тел. // ФТТ. - 2004. - Т. 46, в. 5. - С. 769-803. 5. Горидько Н.Я. Дисс. канд. физ.-мат. наук "Изучение природы фотомеханического эффекта в кристаллах". - К.: КГУ им. Т.Г. Шевченко, 1970г. 6. Косцов А.М., Косцова О.М., Левин М.Н. Метод контроля адсорбции на поверхности твердых тел по микроволновым спектрам отражения. // Вестник ВГУ, серия: физика, математика. – 2001. – № 2. - С. 21 - 24. 7. Левин М.Н., Зон Б.А. Воздействие импульсных магнитных полей на кристаллы Cz–Si. // ЖЭТФ. – 1997. – Т. 111, № 4. – С. 1373–1397. 8. Левин М.Н., Татаринцев А.В., Косцов О.А., Косцов А.М. Активация поверхности полупроводников воздействием импульсного магнитного поля. // ЖТФ. - 2003. - Т. 73, вып.10 - С. 85–87. 9. Макара В.А., Кольченко Ю.Л., Стебленко Л.П., Руденко О.В., Науменко С.М. Вплив постійного магнітного поля на мікротвердість кристалів кремнію. // Вісник Київського університету, Серія: Фіз.-мат. науки. – 2003. – Вип. № 1. – С. 377–383. 10. Макара В.А., Стебленко Л.П., Кольченко Ю.Л., Науменко С.М., Волкова Т.В., Стельмах О.І. Вплив водних розчинів та хімічної обробки на магнітомеханічний ефект. // Фізика і хімія твердого тіла. - 2006. – Т. 7, № 1. – С. 131–137. 11. Макара В.А., Стебленко Л.П., Курилюк А.М., Коплак О.В., Науменко С.М., Кобзар Ю.Л., Дегода В.Я., Весна Г.В. Зміна характеру релаксації магнітомеханічного ефекту в умовах комбінованого впливу магнітної та вакуумної обробок. // Вісник Київського університету, Серія: фізико-математичні науки. - 2008. – в. 8–9. – С. 71–76. 12. Моргунов Р.Б. Спиновая микромеханика в физике пластичности. // УФН. – 2004. – Т.174, № 2. С. 131–153. 13. Урусовская А.А., Альшиц В.И., Смирнов А.Е., Беккауер Н.Н. Эффекты магнитного воздействия на механические свойства и реальную структуру немагнитных кристаллов. // Кристаллография. – 2003. – Т. 48, № 5. – С. 855–872. 14. Galiy P.V., Nenchuk T.N., Stakhira J.M., Spitkovsky J.M.. Dislocations and Exoemission Properties of Silicon. // Поверхность. Физика, химия, механика. - 1993. - Т. 8. - С. 61-65.

Надійшла до редколегії 30.01.11

УДК 539.26:548.4

П. Теселько, канд. фіз.-мат. наук, Б. Пацай, канд. фіз.-мат. наук

ВИВЧЕННЯ ПРОЦЕСУ РОЗПАДУ ТВЕРДОГО РОЗЧИНУ КИСНЮ В CZ-SI

В роботі проаналізовано ряд робіт присвячених дослідженню преципітації кисню, методами трикристальної дифрактометрії та вимірювання магнітної сприйнятливості, в кристалах кремнію, вирощеного методом Чохральського (Cz-Si) із введеними в них локальними дефектами у процесі відпалу при температурах 850–1000°С та повторного відпалу при 1050°С. Спираючись на дані дослідження, а також літературні дані, запропоновано вірогідну гіпотезу утворення та руйнування термодонорів-II (ТД-II).

In work we were analyzed series of researches about investigation of oxigen precipitation in Cz-Silicon with interstitial local defects under heat treatment (850–1000°C) and complementary annealing (1050°C) by tripple crystal X-ray diffractometer. According the data of researches and literature data we suggest the possible hypothesis of formation and destruction of thermodonors-II (TD-II).

Вступ. Відомо, що у вирощеному методом Чохральського кремнії (при температурі плавлення) в міжвузлях може знаходитись, у вигляді твердого розчину, до 1,8×10¹⁸ см⁻³ атомів кисню. Із зменшенням температури твердий розчин поступово розпадається, а кисень випадає з нього утворюючи різноманітні коагулянти, преципітати, кисневі кластери або комплекси. При відносно низьких температурах відпалу кисневі комплекси мають нанометричні чи навіть ангстремні розміри, виявляються електрично активними і звуться термодонорами (ТД). В основному за зміною електричних і оптичних характеристик кристалів досить добре вивчено ТД-І (тривалий відпал при температурах близько 450°С) та ТД-II (відпал при 650 ÷ 800°С). Нажаль, не дивлячись на широкі дослідження цих утворень, треба відзначити, що деталі їх атомної структури достеменно до цього часу залишаються невідомими [1].

Відпал Cz-Si при більш високих температурах приводить до руйнування спочатку ТД-I, а в області 900 ÷ 1000^OC – і ТД-II. При цьому зникає їх донорна активність, про руйнування ж їх атомної структури нічого невідомо.

Одночасно, багатьма дослідниками спостерігалося утворення в процесі тривалих відпалів кристалів кремнію при температурах 400 ÷ 1200[°]C, більш чи менш значних за розмірами, структурні дефектів, які ототожнюються з міжвузельними дислокаційними петлями, або із преципітатами, що складаються з міжвузельних атомів кремнію та фази *SiO_x* [4, 6, 7, 8, 16, 21]. Елект-

ронна мікроскопія та рентгенівська дво- та трикристальна дифрактометрія дає можливість визначити розміри цих утворень та їх концентрацію, але нажаль не гарантує ідентифікацію спостережуваних дефектів. Тим більше, залишається відкритим питання про хімічний склад преципітатів. Адже до них, мабуть, входять як молекули *SiO_x*, так і кремнію. Структурно ж преципітати можуть утворювати коезит, або бути аморфними.

Ці утворення, здається, електрично-нейтральні, але тоді питання про фізичну природу руйнування при температурах 900°С і вище попередньо заряджених ТД-ІІ залишається відкритим. Не існує чіткої відповіді також відносно спорідненості ТД-ІІ з спостережуваними електронно-мікроскопічно, чи за розсіянням рентгенівського випромінювання кисневими, або киснево-кремнієвими преципітатами. Більш того, поки що немає можливості гарантувати достовірність ідентифікації розсіюючих рентгенівське випромінювання центрів.

Три- та двокристальна дифрактометрія є надзвичайно чутливим та зручним методом вимірювання інтенсивності розсіяння рентгенівського випромінювання. Відомо, що останнє безпосередньо пов'язане із концентрацією та розмірами розсіюючих випромінювання центрів. Але, виходячи із експериментальних даних, важко встановити природу центрів розсіяння, адже вони можуть бути як дислокаційними петлями (можливо навіть декількох типів), так і кластерами. Подальша теоретична обробка експериментальних даних ґрунтується на певних моделях і тому її достовірність залежить від вірогідності використаної моделі. Завдяки цьому, в деяких дослідженнях прямо говориться про неоднозначність знаходження параметрів дефектів і розглядаються можливі варіанти її усунення [2].

Більш прямим методом вивчення процесів розпаду є високороздільна електронна мікроскопія, де питання ідентифікації новоутворень не стоїть так гостро. Однак, складність методики і особливо набору потрібної статистики при обчисленні розмірів та концентрації тих чи інших, безпосередньо спостережуваних дефектів, є причиною існування надзвичайно обмеженої кількості подібних публікацій.

Зокрема, нам відомі лише роботи [7, 18] такого типу, але і в них кількісні дані про спостережувані структурні дефекти, що виникають при певних температурах відпалу кремнію, дуже обмежені. Наприклад, у [7] ці дані стосуються лише преципітатів і зовсім відсутні для дислокаційних петель.

Зважаючи на сказане, доцільно було співставити дані окремих уже відомих вимірювань, виконати їх певний порівняльний аналіз і при необхідності доповнити експериментальними фактами, які б підвищували вірогідність достовірності фізичної природи обговорюваних явищ. У цьому ми вбачали мету даної публікації.

Експериментальні дані та їх обговорення. Перш за все, слід звернути увагу на те, що за опублікованими раніше даними [11, 12] розміри і концентрація преципітатів, що утворюються при розпаді твердого розчину кисню в кремнії, аналогічно до концентрації ТД-II [1] визначаються великою мірою температурним режимом попереднього відпалу зразків. Це обумовлено температурною залежністю величини критичного радіусу кластера (такого, що забезпечує його подальше зростання). З підвищенням температури первинного відпалу останній зростає, а отже, концентрація центрів зародження преципітатів падає. Падає вона також і за рахунок протікання коагуляційних процесів при подальшому відпалі кристалів.

Отже, передісторія зразка відіграє важливу, якщо не визначальну, роль у встановленні в подальшому тих чи інших характеристик його структурної досконалості. Тому, щоб мати можливість співставлення даних, ми повторили в даній роботі режими відпалу зразків використані в [7], а саме перший відпал при температурах 850 ÷ 100°С протягом 5 годин і повторний відпал тих же зразків при температурі 1050°С протягом 24 годин. Зразок було вирізано з вирощеного за методом Чохральського кремнію типу $KE\Phi$ -2,0 з концентрацією кисню біля 2 × 10¹⁸см⁻³ і відполіровано в заводських умовах.

З усіх зразків на рентгенівському трикристальному дифрактометрі знімалися дифрактограми за Бреггом на випромінюванні *Си*_{Ка}1, при симетричному відбитті від поверхні (111) при їх повороті відносно бреггівського положення на кут α від 10 до 100" з кроком 1,15". В усіх випадках підтримувалась стала інтенсивність випромінювання, що падало на зразок, $I_0 \cong 10^5$ імп/с.

Отримані дифрактограми мали звичайний трипіковий вигляд, тому їх тут не наводимо. Комп'ютерна обробка дозволяла визначати пікові й інтегральні інтенсивності та напівширини всіх трьох дифрактометричних максимумів при різних α . Останнє дало можливість підрахувати розміри та концентрацію утворених при відпалі кластерів і дислокаційних петель. Детально результати таких підрахунків і методика їх виконання викладені в роботі [4]. Натомість виконаємо аналіз отриманих в [4] та інших подібних роботах даних.

Перш за все зауважимо, що випадати з твердого розчину повинен лише надлишок по відношенню до розчинного в кремнії при даній температурі кисню. Позначимо цю величину Δn . В інтервалі вказаних вище робочих температур ця величина сягає приблизно $(1,7 \div 1,9) \times 10^{18} \text{см}^{-3}$ [14]. Як відомо, [1, 7], кисень випадає з твердого розчину утворюючи аморфну коезитну фазу. В кристалічному коезиті на кожну молекулу SiO_2 припа-

дає об'єм 36,43 $\stackrel{_o}{A}$. В аморфній фазі цей об'єм може зрости на 2 ÷ 5 %. Отже, молекула SiO_2 перевищує за об'ємом

о³ молекулу кремнію (~20 *A*) приблизно вдвічі. Тому утворення кисневих комплексів веде до появи пружних напружень в матриці кремнію, які частково послаблюються емісією міжвузлових атомів кремнію з преципітату в матрицю. Число цих атомів за розрахунками [1] становить 0,5 на один атом кисню. Вони утворюють дислокаційні петлі впровадженого типу або, можливо, преципітати, що складаються з аморфного кремнію [7]. При зростанні поля напружень поблизу преципітату вище певного критичного значення, преципітатом видавлюються дислокаційні петлі, які його оточують.

Отже, повна зміна об'єму матеріалу в результаті преципітації однієї молекули SiO2 мусить складати o ³ біля 60 А . Останнє дає можливість, обчисливши за концентрацією та радіусом преципітатів їх загальний об'єм в одиниці об'єму матеріалу, знайти число атомів кисню n_{O_2} , яке необхідне для їх утворення. Виходячи з подібної процедури було оцінено це число (табл. 1) у випадку всіх відомих нам робіт, в яких визначено за твердженням авторів характеристики преципітатів. При підрахунках вважалося, що дископодібні преципітати мають об'єм $v_1 = \pi R_p^2 h_p$, а октаедричні (сферичні) $v_2 = \frac{4}{3} \pi R_p^3$. Розрахунки велися виходячи із середньогеометричного об'єму кластера, що дорівнює $v=\sqrt{v_1v_2}$. Товщина кластера h_p визначалася за відомою [19] формулою $h_p = a_1 R_p (L_0/R_p)^{a_2}$, де для кремнію $a_1 = 3,96, a_2 = 0,597, L_0 = 0,89 \times 10^{-8}$ cm.

| Nº | Час відпалу, год | т, ⁰ С | $_{N_{O_2}}$ см ⁻³ $	imes$ 10 ⁻¹⁸ | Джерело |
|----|------------------|--------------------------|---|---------|
| 1 | 8 | 1000 | 0,053 | [18] |
| 2 | 6 | 1050 | 0,2 | [20] |
| 3 | 50 | 1160 | 0,015 | [15] |
| 4 | 6 | 1080 | 3,47 | [13] |
| 5 | 5+3 | 850+1100 | 32,0 | [5] |
| 6 | 5+3 | 950+1100 | 33,7 | [5] |
| 7 | 3 | 650 | 0,01 | [7] |
| 8 | 3 | 750 | 0,10 | [7] |
| 9 | 3 | 800 | 1,2 | [7] |
| 10 | 3 | 850 | 1,55 | [7] |
| 11 | 3 | 900 | 71,9 | [7] |
| 12 | 3 | 950 | 1500 | [7] |

Таблиця 1. Число атомів кисню, необхідне для утворення преципітатів

При аналізі наведеної таблиці даних, перш за все відзначимо, що існує ряд робіт де $n_{O_2} \leq \Delta n$. До цих робіт входять як електронно-мікроскопічні [18, 20], так і рентгенівські [15] дослідження. Цікаво, що отримані практично в одних і тих же умовах відпалу структури преципітатів можуть сильно відрізнятися за величиною n_{O_2} (як в [13, 20]).

Здається, при рентгенівських дослідженнях $n_{\scriptscriptstyle O_2}$ ви-

являється більшим, ніж у випадку електронної мікроскопії. Цікаві електронно-мікроскопічні дані наведено в роботі [7]. Автор прослідкував утворення кластерів починаючи з порівняно низьких температур (650°С) до високих (950 ÷ 1000°С). Ці дані наведено в табл. 1 повністю. Добре видно, що при температурах відпалу менших 850°С $n_{O_2} < \Delta n$. Починаючи з 900°С спостеріга-

ється дуже різке зростання цієї величини, обумовлене катастрофічним ростом розмірів спостережуваних преципітатів. Як відомо, саме з 900°С різко зростає відношення концентрації дислокаційних петель c_D до концентрації кластерів c_p [5]. Отже, мабуть, при цих температурах інтенсифікується процес видавлювання дислокаційних петель зростаючими кластерами. Останнє можна підтвердити аналізуючи температурний хід залежності півширини дифузного піку.

Дійсно відомо [3], що його напівширина може бути підрахована при $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \alpha \sin \theta_B \le k_m = \frac{2\pi}{R_0}$ виходячи із співвідношення

$$w_d = \frac{\sin 2\theta (k_0)}{B_0} |\alpha| \tag{1}$$

Тут $B_0 = 3,016 \times 10^{-2} B_K$ для кластерів і 1,86 B_D – для дислокаційних петель (CuK_{α1} (111) відбиття). Середнє значення (для плоских і сферичних кластерів) $B_K = 3,59 \times 10^{39} R_0^{-5,4}$, а $B_D = 3,46 \times 10^{30} R_0^{-4}$ [16]. Функція $j(k_0) = B(aR_0^2\alpha^2 - \ln R_0\alpha)$, тут для кластерів $B = B_K$, $a = 2,081 \times 10^{14}$, b = 17,183, а для дислокаційних петель $B = B_D$, $a = 4,252 \times 10^{13}$, b = 16,835.

При малих R_0 і а першим членом в дужках можна знехтувати. Тоді з (1) легко дійти висновку, що напівширина дифузного піку при сталому а повинна бути суттєво більшою у випадку кластерів, чим у випадку дислокаційних петель. Отже, якщо зроблений вище висновок про видавлювання кластерами дислокаційних петель при температурах вище 850÷900°С правильний, температурна залежність напівширини дифузного піку при сталому а повинна бути падаючою. Експеримент показує, що це дійсно так (рис. 1):



Рис. 1. Залежність середнього значення півширини дифузного піку від температури термообробки для зразків 1 – що пройшли високотемпературну обробку (ВТО); 2 – що пройшли ВТО та відпал при 1050°С

До речі, зауважимо тут, що співвідношення (1) значно простіше звичайно використовуваної при підрахунках формули інтегральної інтенсивності дифузного піку. До того ж півширина дифузного піку практично не залежить від таких інструментальних факторів як початкова інтенсивність падаючого на зразок рентгенівського випромінювання, відбивна здатність кристалів тощо, які часто експериментально важко вимірюються. Тому з (1), мабуть, надійніше оцінювати R₀, ніж з рівняння інтегральної інтенсивності. До того ж, у це співвідношення не входить концентрація розсіюючих центрів. Отже, оскільки залежність $w(\alpha)/\alpha$ від $\ln \alpha$, при невеликих R_0 і α , повинна бути лінійною, то її перетин з віссю абсцис дасть можливість отримати R₀. Подібні вимірювання нами було зроблено для всіх згаданих вище температур. Отримані значення $R_{0w(\alpha)}$ в порівнянні з отриманими з інтегральної інтенсивності дифузних піків R_{0Σ} вміщено в табл. 2. Можна помітити, що $R_{0w(lpha)}$ завжди дещо відрізняються від $R_{0\Sigma}$. Останнє може свідчити про те, що дифузний пік дифрактограми являє собою суму двох максимумів – одного вузького і високого та другого - широкого і низького.

Спираючись на наведені вище спостереження нам здавалося доцільним висловити деякі припущення про природу ТД-II. Відомо, що на сьогодні загальноприйнятої моделі ТД-II не існує [1]. Найбільш вірогідними вважаються моделі ТД-II, де їх існування пов'язується з наявністю великих SiO_x кластерів [8], на поверхні розділу яких з кремнієвою матрицею створюються за аналогією з МОН структурою донорні центри [10, 17] обумовлені виникненням n-області поблизу поверхні кисневого преципітату [9]. Можливо, їх природа тісно пов'язана із спотворенням кристалічної решітки поблизу кисневомісткого преципітату викликаним різницею молекулярних об'ємів SiO_x і Si, а також виникненням завдяки цьому флуктуацій кристалічного потенціалу, на яких можуть локалізуватися електрони [6].

| Nº | Т, °С | $R_{0\Sigma}$ × 10 ⁻⁵ | $R_{0w(lpha)}	imes 10^{-5}$ |
|----|-------|----------------------------------|-----------------------------|
| 1 | 900 | 2,6 | 3,42 |
| 2 | 950 | 4,74 | 3,78 |
| 3 | 1000 | 7,05 | 3,20 |

Таблиця 2. Значення R_0 отримані з даних про інтегральну інтенсивність дифузного піка та напівширини

Так чи інакше, але експериментально встановлено, що для виникнення ТД-II треба мати великі кисневомісткі кластери. Такими кластерами, виходячи з [7], можуть бути лише пластинчасті та октаедричні преципітати. Саме ці преципітати ми й спостерігаємо рентгенографічно. Оскільки в області температур поблизу 900°С починається генерування пластинчатими преципітатами дислокаційних петель і інтенсивне перетворення не оточених дислокаціями преципітатів у октаедричні [7], мабуть, слід зробити висновок, що наявність ТД-II пов'язана саме з пластинчатими преципітатами.

Висновки. Загальний об'єм коагулянтів в одиниці об'єму матеріалу, як правило, перевищує об'єм, що займають випадаючи з твердого розчину кисневі з'єднання (*SiO_x*). Особливо це стосується зразків

відпалених при температурах вище 850 ÷ 900°С, коли за електронно-мікроскопічними даними плоскі дископодібні преципітати починають видавлювати дислокаційні петлі. Останнє є одним із свідчень того, що оцінюючи розміри преципітатів у цих умовах, ми обчислюємо не розміри самого преципітату, а значно більші за нього розміри розсіюючого рентгенівське чи електронне випромінювання центра, який складається із самого преципітату і порушеної, напруженої, фактично дислокаційної області навколо нього.Залежність напівширини дифузного піку від розмірів преципітату значно слабша його інтегральної інтенсивності (логарифмічна, а не степенева). Тому при обчисленні з такої залежності розміри преципітатів виявляються меншими, що на нашу думку більш точно відтворює реальність.

1. Бабич В. М, Блецкан Н. К, Венгер Е. Ф. Киспород в монокристаллах кремния. – К., 1997. 2. Кисловський Є. М., Оліховський С. Й., Молодкін В. Б. та ін. // Металлофиз. и новейшие техн. 2000. Т. 22 (7). С. 21–30. 3. Немошкаленко В. В., Молодкин В. Б. Опиховскип С. П. и др. // Металлофизика. 1993. Т. 15 (11). С. 53–66. 4. Новиков Н.Н., Пацай Б.Д. // Металлофизика и новейшие технологии. 2003. Т. 25 (2). С. 257–268. 5. Новиков ММ., Пацай Б.Д., геселько П.О. // НТШ. 2002. Vol. 5, С. 76–82. 6. Babich V.M., Baran N.P., Bugai A.A. et. al. // Phys. Stat. Sol. (a). 1988. Vol. 109 (2). Р. 537–547. 7. Bender H. // Phys. Stat. Sol. (a). 1984. Vol. 86 (1). Р. 245–261. 8. Cazcarra V., ZuninoP. // J. Appl. Phys. 1980. Vol. 51 (8). С. 4206–4013. 9. Henry A., Pautrat J.L, Saminadayar K. // Proceedings of 14 international Conference on Defects in Semiconductors. 1986. Р. 985. 10. Holzlein K, Pensl G., Schulz M. // Appl. Phys. A. 1984. Vol. 34 (3).

C. 155–164. 11. KeltonK.F. //J. Appl. Phys. 1999. Vol. 85 (12).
P. 8097–8111. 12. Kelton K.F., Wei P.F., Falster R. // J. Appl. Phys. 2000. Vol. 88 (9). P. 5062–5070. 13. Kislovskii E. N. // Phys. Stat. Sol. (b). Vol. 231 (1). P. 213-221. 14. MikkelsenJ.C. // Appl. Phys. Lett. 1982. Vol. 41 (9). P. 871-873 15. Molodkin V.B., Nemoshkalenko V.V., Olikhovskii S.I. et. al. // Метаплофиз. и новейшие техн. 1998. T. 20 (11). C. 29–40. 16. Novykov MM., Patsai B.D. // Ukrainian Journal of Physics. 2005. Vol. 50 (5). C. 497–500. 17. OhsawaA., Honda K, Shibatomi S., Ohkawa S. // Appl. Phys. Lett. 1981. Vol. 38 (10). C. 787–792. 18. Patrick W, HearuE, Westdorp W, Boag A // J. Appl. Phys. 1979. Vol. 50 (11). P. 7156–7164. 19. Trinkaus H. // Phys. Stat. Sol. B. 1972. Vol. 54 (1). P. 209–218. 20. Wada K., Inoue N.. Kohra K. // J. Cryst. Growth. 1980. Vol. 49. P. 749–752.

Надійшла до редколегії 31.01.11

УДК 539.26

M. Shevchenko, PhD

A NEW APPROACH TO THE X-RAY STUDIES OF MODULATED STRUCTURE IN AGED METALLIC ALLOYS

It is shown that the X-ray 'fine structure' of integrated diffracted intensity from ordered precipitates in aged metallic alloys is extinction effect. It is due to regular deformations of basic matrix originated in mismatch between lattices of matrix and precipitates. The extinction transformations of the intensity are size-depended effect, which is specified by the relation between size of crystallites and X-ray interbranch extinction length.

Показано, що ''тонка структура' 'інтегральної інтенсивності хвилі дифрагованої від впорядкованих виділень у старіючих сплавах є екстінкційним ефектом. Він має місце завдяки регулярним деформаціям базісної матриці, що виникають внаслідок різниці в сталих гратки матриці і виділень. .Екстінкційні трансформації інтенсивності є розмірним ефектом, якій залежить від певного співвідношення між розміром кристалітів та міжгілковою екстінкційною довжиною рентгенівських променів.

Theoretical concepts As it will known, modulated structures may be formed in metallic alloys during the early stage of precipitation [7]. In this case, alloys develop satellites or side-bands to the Bragg reflection. These X-ray features are conventionally treated as result of X-ray scattering with precipitates. At the same time, TEM studies of aged alloys reveal often a small total volume of precipitates, while intensities of the additional peaks may be very considerable [5,6]. Bearing this in mind, we propose a new viewpoint on the nature of the X-ray features from alloys with small grain size. It is suggested that the 'fine structure' is due to the X-ray scattering by lattice distortions of the matrix. In this connection, we take into account strong deformation of the matrix, caused by mismatch between lattices of matrix and precipitates. Using the approach developed in [3,4], the diffracted intensity from strongly deformed matrix can be written as follows

$$D_g(\omega) = \frac{i\pi}{\xi_g} \int_0^{L_z} \exp\left\{\frac{i\pi}{\xi_g} \left[-\omega + \Theta(z_0 - z)Q(z)\right]z\right\} dz \quad (1)$$

where $2Q(z) = \left[\left(2\pi p(z)/\xi_g \right)^2 + \left(\eta'(z)/p^2(z) \right)^2 \right]^{1/2}$ is the interbranch splitting of the local dispersion surface; $p(z) = \left[1 + \eta^2(z) \right]^{1/2}$. Here, the local deviation $\eta(z) = \omega + (\vec{g}d\vec{u}(z)/dz)\xi_g/(2\pi)$, such that \vec{g} , $\vec{u(z)}$, ξ_g , L_z and ω are the diffraction vector, displacement field, the conventional extinction length, crystal thickness

and the departure of incident wavevector k from Bragg's law, respectively. (Size of the crystallite along the entrance surface will be denoted L_{x} .)

It should be noted that $\Theta(z_0 - z)$ is the step-function, which describes the interbranch jump of the tie-point near the point z_0 , where the Bragg's conditions are satisfied [1].

It is assumed that the deformation u depends on the depth into the crystal z. For simplicity, we will approximate the strain field by the cylindrical bending $u(z) = \alpha z^2/(2R)$, where R(R > 0) and α are the radius of curvature and constant describing deformation, respectively. Using expression (1), we will calculate the integrated diffracted intensity, by averaging over orientation of aged crystallites. The scheme of X-ray diffraction by randomly oriented crystallites is shown in Fig. 1

In this figure, the angle φ describes the misorientation between crystallites specified by the reciprocal lattice vectors \overrightarrow{OG} and $\overrightarrow{OG_1}$, the angles Θ_B and $\Delta\Theta$ stand for the Bragg's angle corresponding to the infinite crystal and the given deviation, respectively. It is necessary to note that the dynamical (interbranch) contribution $\overline{S_1S}$ is taken into account as well. Thus, we can obtain the following expression for the integrated diffracted intensity

$$I_{g}^{\text{int}}(\vec{q}) = S_{g}(q_{x}) \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \left| D_{g}(q_{z}, \omega) \right|^{2}.$$
 (2)

© Shevchenko M., 2011

where we use the compact notations

$$S_{g}(q_{x}) = \frac{4}{q_{x}^{2}} \sin^{2}\left\{\frac{q_{x}L_{x}}{2}\right\}.$$
 (3)

$$D_g(q_z,\omega) = \frac{i\pi}{\xi_g} \int_0^{L_z} \exp\left\{i\left[q_z + \frac{\pi}{\xi_g}\left(-\omega + \Theta(z_0 - z)Q(z)\right)\right]z\right\} dz \quad (4)$$



Fig. 1. X-ray Laue diffraction by crystallites

The values q_x and q_z are the appropriate components of the given deviation vector q = GQ. Moreover, the limits of integration in (5) are extended to the infinities, because the integrand falls rapidly with increasing the value ω . (It should be noted that averaging over ω is equivalent to averaging over orientations of aged crystallites.) As it appears from (2), the integrated diffracted intensity depends on the variable q_z . This is owing to the specific, nonadditive dependence of the diffracted intensity from the deviations q_z and ω . This fact is inherent to the dynamical processes and it is absent in the X-Ray kinematical diffraction. Because the given point Qis very close to the reciprocal lattice point G, the values $q_x = 2k\Delta\Theta\cos\Theta_B$ and $q_z = 2k\Delta\Theta\sin\Theta_B$,. Then, replacing the values q_x and q_z by these relations, intensity I_g^{int} can be written as a function of the angular deviation $\Delta \Theta$

 $I_{g}^{\text{int}}\left(\Delta\Theta\right) = S_{g}\left(\Delta\Theta\right)R_{g}\left(\Delta\Theta\right)$ (5)

where we denote

$$R_{g}(\Delta\Theta) = \frac{1}{\varepsilon^{2}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \left| \int_{0}^{l} \exp\left\{ \frac{i}{\varepsilon} \left[2\nu\Delta\Theta - \omega + \Theta(\zeta_{0} - \zeta)Q(\zeta) \right] \zeta \right\} d\zeta \right|^{2}$$
(6)

Here $v = g\xi_g/(2\pi) = 1/(\pi\chi_g)$, where χ_g is the electric susceptibility and we transform q_x to the equal value $g\beta\Delta\Theta$, where $\beta = \cot\Theta_B$. For convenience of the numerical calculations, we replace the spatial variable of integration z by the dimensionless variable $\xi = \pi \epsilon z/\xi_g$, such that $l = \pi \epsilon L_z/\xi_g$. It is worth to note that for ideal crystallites, the function $R_g(\Delta\Theta)$ does not depend on its argument and the expression for I_g^{int} passes to the appropriate expression for the kinematical intensity given in [2]. However, for strong deformations, the intensity $I_g^{\text{int}}(\Delta\Theta)$ may have a prominent interbranch features. Due to resonance increase, contribution of interbranch scattering to intensity $I_g^{\text{int}}(\Delta\Theta)$ can be very significant and, therefore, it can be sharply changed with varying $\Delta\Theta$

Numerical results. Interbranch scattering, being produced by dynamical interaction of the X-ray wavefields, may modify essentially the form of the X-ray rocking curve [4,5]. In this case, the deformation must exceed considerably the limit of validity of the Eikonal approximation and, furthermore, the crystal thickness has to be of the order of interbranch extinction length $\Lambda_g = 2\xi_g/\epsilon$. Then, assuming that, $\varepsilon >> 1$ it is easily to obtain the relation $\Lambda_g << \xi_g$. It means that the interbranch resonance features in the X-ray rocking curve happen only for very "thick" crystal. Assuming the deformation $\varepsilon = 10^2$ and value $\xi_{\rm g} \approx 10^{-5}\,\text{m},$ the interbranch extinction length $\Lambda_{\rm g}$ will be of the order of 10^{-7} m. This means that the appropriate thickness of crystallite may be estimated as the sub-micron value of the order of 10^{-7} m.

The resonance interbranch peculiarities may be pronounced in the function $R_g(\Delta\Theta)$ too. However, in opposite to the X-ray rocking curve relating to the single crystallite, this function is the integral value which specifies all crystallites. Employing the expression (6) and, hereafter, taking the parameter $\nu = 10^5$, we calculate the function $R_g(\Delta\Theta)$ for thickness of crystallites

$$L_z$$
 =1.6 Λ_g , 3.2 Λ_g and 14.3 Λ_g .



Fig. 2. The function $R_g(\Delta\Theta)$ for the different thickness of crystallites: **a** – $L_z = 1.6\Lambda_g$ **b** – $L_z = 3.2\Lambda_g$, **c** – $L_z = 14.3\Lambda_g$

The angular oscillations of the function $R_g(\Delta\Theta)$, observed in Figs. 2(a), 2(b), and 2(c), are originated in the interbranch scattering. Indeed, the dependence $R_{g}(\Delta\Theta)$ of on the value $\Delta \Theta$ is predetermined by diffracted intensity $\left|D_{\varphi}(q_{z},\omega)\right|^{2}$, which is the modulus squared of the Fourier components of the amplitude of the diffracted wave, in fact. Due to the interbranch oscillations of the X-ray wavefields, this intensity is the quasiperiodic function with the effective period $q_z^{e\!f\!f}$ which will also specify the interbranch oscillations of function $R_{\varphi}(\Delta \Theta)$. As appears from (4), the period satisfies estimation $q_z^{e\!\!f\!f} \approx \epsilon \pi/\xi_g$. Then, for the effective period $\Delta \Theta_R^{e\!f\!f}$ of the angular oscillations of $R_g(\Delta \Theta)$, one can obtain the relation $\Delta \Theta_R^{e\!f\!f} \approx \varepsilon/(2\nu)$, by taking into account the formula $q_z^{\it eff}=g\Delta\Theta_R^{\it eff}$. For the model parameters corresponding to Fig. 2, we obtain the effective $\Delta \Theta_R^{eff} \approx 10^{-3}/2$, that correlates with the period presented numerical calculations. It should be also noted that the number of the interbranch oscillations,

excited near the point z_0 , grows with increasing the depth in the crystal. In the result, the function $R_g(\Delta\Theta)$ will have a more prominent periodic character with increasing of the thickness of crystallites. Moreover, the interbranch oscillations, shown in Fig. 3, occur only within the angular range, in which the interbranch scattering mainly contributed. Beyond this range, the

interbranch oscillations disappear, such that the function $R_g(\Delta\Theta)$ becomes equal to its kinematical value, which does not depend on the angular deviation $\Delta\Theta$.

The interbranch oscillations of function $R_g(\Delta\Theta)$ are able to lead to anomalies in the appropriate integrated diffracted intensity. Using the expressions (5), (6), we calculate $I_g^{\text{int}}(\Delta\Theta)$ to show it. Then, assuming for simplicity that $L_z = L_x$, we plot the curve $I_g^{\text{int}}(\Delta\Theta)$ for the thickness of crystallites $L_z = 1.6\Lambda_g$, $3.2\Lambda_g$ and $14.3\Lambda_g$ (the appropriate values $l \approx 10, 20$ and 90, respectively). The numerical results are shown in Figs. 3(a), 3(b) and 3(c) which correspond to parameter $\beta = 0.2$.



Fig. 3.The integrated diffracted intensity $I_g^{\text{int}}(\Delta \Theta)$ for the different thickness of crystallites: **a** - $L_z = 1.6\Lambda_g$, **b** - $L_z = 3.2\Lambda_g$, **c** - $L_z = 14.3\Lambda_g$

As one can see, the curves plotted in Figs 3(a), and 3(b), exhibit splitting of the main peak into peaks with comparable intensities (!). On the other hand, this effect is absent for the curve shown in Fig. 3(c). In the former cases the thickness of crystallites is comparable with the interbranch extinction length Λ_g and it is appreciably greater than Λ_g in the latter case. This effect is the interbranch effect. Its size-dependent character can be verified by analyzing the diffraction width of the intensity $I_g^{\text{int}}(\Delta \Theta)$. Clearly, its half-width is determined by function $S_{\sigma}(\Delta \Theta)$. In the reciprocal space, the broadening of this function, is well known, can be assessed as the value $2\pi/L_{r}$. Then, the angular half-width $\Delta\Theta_{S}$ of $S_{g}(\Delta\Theta)$ satisfies the estimation $\Delta \Theta_S \approx \pi \varepsilon / (l \nu \beta)$. It is evidently that the interbranch features manifest themselves in the curve $I_g^{\text{int}}(\Delta \Theta)$ when the effective period of the interbranch oscillations of the function $R_g(\Delta\Theta)$ will be of the order of the half-width of the function $S_g(\Delta \Theta)$, that is

This expression determines the condition of appearance of the interbranch effects in the integrated diffracted intensity. Substituting the given above relations for the values $\Delta \Theta_R^{e\!f\!f}$ and $S_g(\Delta \Theta)$ in (7) and taking into account assumption $L_z = L_x$, we rewrite it as $L_z \approx \Lambda_g / \beta$, This condition is true for the cases illustrated by Figs. 3(a) and 3(b). In addition, it follows from it that the interbranch "fine structure" effects do not occur in the curve $I_g^{\rm int}(\Delta \Theta)$ if the value L_z exceeds considerably the interbranch extinction length Λ_g . In this case, $\Delta \Theta_S <<\Delta \Theta_R^{e\!f\!f}$, such that the interbranch oscillations of the function $R_g(\Delta \Theta)$ will not affect the main peak of the intensity $I_g^{\rm int}(\Delta \Theta)$. Nevertheless, the interbranch scattering from large crystallites may influence slightly the integrated intensity beyond the main peak, (see Fig. 3(c)).

$$\Delta \Theta_R^{eff} \approx \Delta \Theta_S \tag{7}$$



Fig. 4. The integrated diffracted intensity $I_g^{\text{int}}(\Delta \Theta)$ for the different Bragg's angles specified by the parameter β a - $\beta = 0.5$; b - $\beta = 0.8$; thickness of crystallites $L_z = 3.2\Lambda_g$

As appears from (7), the resonance relation L_z/Λ_g depends also from the value β , such that the value L_z/Λ_g decreases with increasing eta . This means that the interbranch features of the intensity $I_{\varphi}^{\text{int}}(\Delta \Theta)$ will depend on the of Bragg's angle, as well. When the Bragg's angle Θ_B decreases, the half-width $\Delta \Theta_S$ decreases too. Due to narrowing of curve $S_{g}(\Delta \Theta)$, the interbranch effects will be less prominent in the curve $I_g^{\text{int}}(\Delta \Theta)$, which is the product of multiplication of the functions $S_g(\Delta \Theta)$ and $R_{\sigma}(\Delta\Theta)$ whose the effective period q_{z}^{eff} does not depend on the Bragg's angle. This is verified by Figure 5, which shows the different modifications of the interbranch features with changes of the Bragg's angle. In Figure 4(a), the intensity $I_g^{\rm int}(\Delta\Theta)$ has the triangular asymmetrical form, whereas for smaller Θ_B , interbranch scattering causes only the non-significant asymmetry of the main peak (see Fig. 4(b)). On the other hand, for great Θ_B , interbranch scattering causes the pronounced splitting of the curve $I_g^{\text{int}}(\Delta \Theta)$ (see Fig. 3(b).

Conclusions. Let us sum up the main results obtained in the work. It is shown that "fine structure" effects in the integrated diffracted intensity from aged crystallites may be treated as result of X-ray interbranch scattering by regular lattice distortions of the basic matrix. These deformations are caused by mismatch between the lattices of matrix and precipitate which form the modulated structure. The 'fine structure' effects, which are extinction features, are related with the crystallite

thickness *t*. They appear when $t \approx \Lambda_g$, where Λ_g is the X-ray interbranch extinction length. It is established that the "fine structure" effects are transformed considerably with variation of the Bragg's angle. These effects are the most prominent for large Bragg's angle.

1. Authier A. Dynamical Theory of X-ray Diffraction. (Oxford. University Press) – 2005. 2. Krivoglaz M. X-Ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals (Berlin: Springer Verlag,) – 1996. 3. Shevchenko M. Size-dependent interbranch peculiarities of X-ray extinction in strongly bent crystals // Acta Crystallographica – 2007 – A63 – P. 273–277. 4. Shevchenko M. Phase modulation effects in X-ray diffraction from a highly deformed crystal with variable strain gradient // Acta Crystallographica – 2009 – A65 – P. 352–359. 5. Ивасишин О., Карасевская О. Тонкая структура рентгеновских линий в сплавах Ti-5–7 % по массе Мо // Металлофизика. - 2000. – T. 22, № 1. – С. 77–83. 6. Магат Л. Рентгенографические исследования распада пересыщенного твердого раствора в сплаве тиконал // Физика металлов и металловедение. – 1965. – T. 19, № 4. – С. 521–529. 7. Чуистов К. Старение металлических сплавов: Монографія. – Киев, Академпериодика. – 2003.

Надійшла до редколегії .05.11.10

УДК 519.9

В. Ящук, д-р фіз.-мат. наук, проф., В. Косач, асп., О. Навозенко, асп., Й. Гражулявічус, д-р фіз.-мат. наук, проф., К. Гриценко, канд. фіз.-мат. наук, с. н. с.

ОСОБЛИВОСТІ СПЕКТРАЛЬНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ ОРГАНІЧНИХ СПОЛУК 2,7-ДИ (9-КАРБАЗОЛІЛ) – 9 - (2-ЕТИЛГЕКСІЛ) КАРБАЗОЛ ТА 3,6-ДИ (9-КАРБАЗОЛІЛ) – 9 - (2-ЕТИЛГЕКСІЛ) КАРБАЗОЛ, А ТАКОЖ ТОНКИХ ПЛІВОК НА ЇХ ОСНОВІ ДЛЯ ЗАСТОСУВАННЯ У ФОТОНІЦІ

В даній роботі досліджувалися властивості тримерів карбазолу 2,7-ди(9-карбазоліл)-9-(2-етилгексіл) карбазол (АМ55b) та 3,6-ди(9-карбазоліл)-9-(2-етилгексіл) карбазол (МS97). Було отримано тонкі плівки за допомогою вакуумного нанесення. Спектри флюоресценції та морфологічні властивості поверхні тонких плівок були досліджені. На базі аналізу спектральних властивостей зроблено висновки щодо перспективності застосування даних сполук як випромінюючих шарів у ОСД(органічних світло-випромінюючих діодах).

In this paper the results of the spectral properties investigations of specific carbazole trimers 2,7-di (9-carbazolyl) – 9 - (2-ethylhexyl) carbazole and 3,6-di (9-carbazolyl) – 9 - (2-ethylhexyl) carbazole are presented. Thin films were obtained by methods of vacuum deposition. The luminescence spectra and morphological properties of the obtained films surfaces were examined. On the base of the analysis of spectral properties conclusions were made about the application possibilities of these compounds as an emitting layer in OLED(Organic Light-Emitting Devices).

Вступ. Останні десятиріччя відзначені значним прогресом у розвитку енергозберігаючих органічних світло-випромінюючих діодів (ОСД), а також технологій виготовлення дисплеїв та джерел освітлення на базі органіки. Незгасаючий інтерес науковців до органічних люмінесцентних матеріалів легко пояснюється рядом переваг, які ці матеріали мають перед неорганічними. До основних переваг електролюмінесцентних матеріалів на органічній основі в першу чергу можна віднести такі: широкі можливості у варіюванні кольору випромінювання завдяки додаванню відповідних хромофорів, відносно невеликі напруги живлення і відповідно відносно висока ефективність ОСД-пристроїв, можливість отримання справжнього білого кольору у дисплеях, гнучкість і можливість створення світловипромінюючих пристроїв великої площі шляхом відносно недорогих технологій нанесення і т. п. [2, 3, 6]

Не зважаючи на значні успіхи у дослідженні органічних люмінесцентних матеріалів і застосуванні їх в освітлювальній техніці та дисплейних технологіях, до сих пір залишається ряд актуальних технічних питань, як, наприклад: проблема недовговічності деяких хромофорів, особливо це стосується синіх випромінювачів, хімічна та механічна стійкість використовуваних матеріалів, покращення ефективності електрондіркової рекомбінації та відповідно люмінесценції у випромінюючому шарі OLED-пристрою, руйнування деяких матеріалів при їх термічному вакуумному нанесенні і т. п., що потребують вирішення.[7]

Зокрема варто відзначити роботи присвячені дослідженню властивостей світло-випромінюючих пристроїв на базі карбазол-містких сполук. В цьому контексті особливий інтерес представляє застосування тонких плівок специфічних тримерів карбазолу, які можуть бути використані як в якості світло-випромінюючих ("сині" хромофори) так і допоміжних (електрон-провідних та інших) шарів. [8,9]

Об'єкти досліджень та експеримент. В даній роботі досліджувалися властивості тримерів карбазолу 2,7-ди(9-карбазоліл) – 9-(2-етилгексіл) карбазол (AM55b) та 3,6-ди(9-карбазоліл) – 9-(2-етилгексіл) карбазол (MS97) (Рис.1) з п-типом провідності, що можуть використовуватися як в якості допоміжних транспортних шарів, так і в якості випромінюючих, як буде показано нижче. Інтерес до цих сполук зумовлений успішним їх використанням у OLED-пристроях саме в якості "host"-матеріалу випромінюючого шару[7].

Для отримання тонких плівок цих сполук використовувалася методика термічного вакуумного нанесення плівок розроблена Гриценком К. П., що буде описана нижче. Швидкість росту плівок визначалася за допомогою кварцового сенсора і програмного забезпечення Sigma SQM 242. Потім досліджувались спектральні властивості розчинів, порошків та плівок AM55b та MS97. Також окремо досліджувались морфологічні та електричні властивості отриманих плівок. Морфологічні особливості плівок досліджувались на ACM. Товщини отриманих зразків лежали в діапазоні 70–150 нм. Всі оптичні дослідження проводилися за нормальних умов. Вимірювання флюоресценції проводились на спектрофлюориметрі Carry Eclipse фірми Varian, поглинання – на приладі Specord UV Vis.

Молекулярна маса досліджуваних сполук складає близько 600 а. о. м Щоб випарувати таку "масивну" молекулу, потрібно прикласти достатньо велику енергію, порівняну з енергією зв'язку атомів у молекулі. Тому важливим є підібрати методику нанесення плівок у вакуумі таку, при якій не спостерігається диспергування речовини на "уламки" молекули (не молекулярні фрагменти). Досліджувані сполуки використовувались у вигляді порошків, тому що термічне випаровуння є оптимальним способом для випаровування і диспергування такого роду сполук, оскільки, розігрів всієї маси речовини не призводить до термодеструкційних процесів у всьому об'ємі, в результаті чого, внутрішні області зразка до моменту виходу на поверхню нагріву майже не руйнуються [9].

Речовини випаровувалися при температурах ≈120 С, і тисках ≈2*10⁻⁵ Па на установці УВН. Діапазон температур тигля та тисків в вакуумній камері істотно впливає на швидкість росту плівки, і тим самим на морфологічні й оптичні властивості плівки. В першу чергу від температури залежить характер руйнування речовини. При температурі, близькій до температури випаровування, велика ймовірність переходу окремих молекул у газову фазу. Однак при температурі значно більшій від температури випаровування збільшується інтенсивність первинних актів розриву С-С – зв'язків. Тому у складі летючих продуктів збільшується вміст "уламків" молекул. Газоподібні мономери закріплюються на поверхні підкладинки при першому зіткненні з нею [8]. Молекулярні мономери мають максимальну рухливість на поверхні конденсації, тому найбільш інтенсивна конденсація протікає на поверхні. Висока ймовірність пружного відбивання багатоатомних частинок в свою чергу призводить до дефектів плівки і суттєво залежить від швидкості нанесення плівки[4]. При підвищенні підведеної температури вище 210 С, значно збільшується швидкість росту з 1 Å/с до 8 Å/с (рис. 2). При температурах вище 250 С швидкість нанесення практично не змінюється, що свідчить про досягнення критичної температури, вище якої відбувається розкладання речовини на фрагменти, які осаджуючись на плівці, утворюють дефекти. Підкладинки, на які наносились плівки, знаходилися на достатньо невеликій відстані від випаровувача (близько 12 см), що дозволяло отримувати плівки при мінімальних швидкостях нанесення. Оптимальна швидкість росту плівки MS 97 та AM 55 складає відповідно 2–3 Å/с і 1–2 Å/с. Температура підкладинки складала не більше 40 С, що унеможливлювало випаровування плівки.



Рис. 1. Структурні формули досліджуваних сполук: 2,7-ди (9-карбазоліл) – 9-(2-етилгексіл) карбазол (АМ55b) – 1 та 3,6-ди (9-карбазоліл) – 9 - (2-етилгексіл) карбазол (MS97) – 2



Рис. 2. Залежність швидкості (V) зростання товщини плівки від температури (T)





Рис. 3. Спектри поглинання, флюоресценції та збудження флюоресценції розчину АМ55b у діоксані (T = 293К, C = 0,6*10⁻⁵ г/см3)

Молекула AM55b, до складу якої входять три карбазольні групи та гексил- (2-етил) група, зображена на рис. 2. Карбазольні групи складають п-електронну систему молекули і відповідно визначають основні спектральні властивості даної сполуки в оптичному діапазоні.

Смуги поглинання та флюоресценції, що відповідають першому електронному переходу мають достатньо добре виражену структуру, причому структура коливальних станів основного та першого збудженого електронного рівня мало відрізняються. Однак зміщення смуг поглинання та флюоресценції AM55b відносно відповідних смуг карбазолу свідчить про те, що карбазольні групи у молекулі AM55b суттєво впливають одна на одну.

По перетину смуг поглинання та флюоресценції було оцінене положення першого синглетного рівня: $E_{S1} \approx 3.5 \text{ eB}$ (або $\lambda = 355 \text{ нм}; \widetilde{V} \approx 28200 \text{ см}^{-1}$).



Хвильове число, см⁻¹

Рис. 4. Спектри поглинання, флюоресценції та збудження флюоресценції розчину MS97 у діоксані (T=293K, C=2,5*10⁻⁵ г/см3)

Молекула сполуки MS97 має структуру, подібну до попередньої, але з іншим просторовим розміщенням бокових карбазольних груп відносно центральної карбазольної групи (рис. 2.). Спектр поглинання рочзину MS97 у діоксані (рис. 4.) за положенням і контуром подібний до спектру поглинання розчину карбазолу, але смуга, що відповідає першому електронному переходу не має чіткої структури і майже непомітна на фоні смуги другого електронного переходу, що дещо ускладнює порівняльний аналіз. Спектр поглинання розчину MS97 у довгохвильовій області схожий на спектр збудження, але має суттєві відмінності у короткохвильовій ділянці.

Смуга флюоресценції рочзину MS97 за формою подібна до смуги флюоресценції розчину AM55b, але зміщена у довгохвильовий бік. Цей факт, на нашу

думку, може свідчити про різну довжину делокалізації π -електронних систем молекул AM55b та MS97.

Аналогічно до попереднього випадку оцінено положення першого синглетного рівня $E_{S1} \approx 3,3~eB$ (або $\lambda = 371~\text{HM}; ~\widetilde{\mathcal{V}} \approx 27000~\text{cm}^{-1}$).

Спектри поглинання і флюоресценції отриманих плівок

Довжина хвилі, нм









~ 59 **~**

В цілому спектри поглинання та флюоресценції розчинів та плівок AM55b та MS 97 за формою подібні. Ця подібність свідчить про те, що у плівці, як і у розчині, взаємодія між сусдініми молекулами незначна імолекули поглинають та випромінють як окремі центри. Спектральними проявами взаємодії між молекулами у досліджуваних плівках є незначна асиметрія коливальних станів смуги поглинання та флюоресценції, а також "блакитний" зсув спектрів поглинання та флюоресценції досліджуваних плівок відносно відповідних спектрів розчинів.

Топографія поверхні отриманих плівок



Рис. 7. Рельєф поверхні зразка MS 97. Локальні шорсткості зразків складають близько 3–6 нм



Рис. 8. Рельєф поверхні зразка АМ 55. Локальні шорсткості зразків складають близько 3–9 нм

Шорсткість отриманих плівок плівок AM 55 та MS 97 не перевищує 10_{HM} (рис. 7, рис. 8). Утворені плівки по структурі аналогічні вихідній речовині, тобто під час термічного диспергування речовини відбувається руйнування молекул в незначній мірі, про що також свідчать отримані спектральні дані. Тому використану методику нанесення плівок у вакуумі можна вважати перспективною для даних сполук.

Висновки. Досліджено спектральні властивості тримерів карбазолу AM55b та MS97 у розчиненому стані та у вигляді плівок. На основі отриманих даних оцінено положення першого електронного синглетно-го рівня для кожної зі сполук.

Аналіз спектрів поглинання та флюоресценції дозволяє стверджувати, що матеріал плівок речовин, нанесених у вакуумі, за використаною нами методикою не змінився порівняно з вихідним. Тому дана методика є перспективною для отримання тонких плівок зі сполук AM 55 і MS 97.

Дослідження морфології плівок показали, що молекули MS 97 і AM 55 у нанесених плівках є стабільними і не формують агрегатів. Шорсткість плівок виміряних зразків AM 55 і MS 97 є відносно незначною і складає 3–6 нм та 3–9 нм відповідно. Враховуючи наведені вище дані можна стверджувати, що використана в даній роботі методика нанесення плівок сполук MS 97 та AM 55 є перспективною для застосування у створенні ОСД-пристроїв.

Автори висловлюють подяку Мельниченко Є. Є., Шубелку Ю. М. та Губерському Л. В.

1. Толстопятов Е. М., Красовский П.М., Получение тонких плёнок распылением в вакууме // Наука и Техника. - 1989. - с. 82-121. 2. Chopra N., Lee J., Zheng Y., et al. High efficiency blue phosphorescent organic light-emitting device // Appl. Phys. Lett. - 2008. - vol. 93. - p. 143307-143307-3. 3. Giebink N.C., Forrest S.R. Quantum efficiency roll-off at high brightness in fluorescent and phosphorescent organic light emitting diodes // Phys. Rev. B. - 2008. - vol. 77. 4. Gritsenko K.P., Krasovsky A.M., Thin film deposition of polymers by vacuum degradation // Chem. Rev. - 2003. - vol. 103(9). - p. 3607-3650. 5. Forrest Stephen R. Ultrathin organic films grown by organic molecular beam deposition and releated theqniques // Chem.Rev. - 1997. - vol. 97. - p. 1799-1816. 6. Niu X., Wang H., Liu J. Efficient white polymer lightemitting diodes based on the control of a emissive polymer morphology through solvent processing // Organic Electronics. - 2010. - vol. 11. - p. 1273-1276. 7. Seidler N., Reineke S., Walzer K., et al. Influence of the hole blocking layer on blue phosphorescent organic light-emitting devices using 3,6-di(9-carbazolyl)-9-(2-ethylhexyl)carbazole as host material // Appl. Phys. Lett. - 2010. - vol. 96. P. 093304-093304-3. 8. Tsai M.-H., Hong Y.-H., Chang C.-H. et al. 3-(9-Carbazolyl)carbazoles and 3,6-Di(9-carbazolyl)carbazoles as Effective Host Materials for Efficient Blue Organic Electrophosphorescence // Adv. Mater. - 2007. - vol. 19. - p. 862-866. 9. Vaeth K. M., Tang C.W. Light-emitting diodes based on phosphorescent guest/polymeric host systems // J. Appl. Phys. – 2002. – vol. 92(7), p. 3447–3452

Надійшла до редколегії 30.11.10

Наукове видання



ВІСНИК

КИЇВСЬКОГО НАЦІОНАЛЬНОГО УНІВЕРСИТЕТУ ІМЕНІ ТАРАСА ШЕВЧЕНКА

ФІЗИКА

Випуск 12

Друкується за авторською редакцією

Оригінал-макет виготовлено Видавничо-поліграфічним центром "Київський університет"

Автори опублікованих матеріалів несуть повну відповідальність за підбір, точність наведених фактів, цитат, економіко-статистичних даних, власних імен та інших відомостей. Редколегія залишає за собою право скорочувати та редагувати подані матеріали. Рукописи та дискети не повертаються.



Підписано до друку 22.08.11. Формат 60х84^{1/8}. Вид. № Фз1. Гарнітура Arial. Папір офсетний. Друк офсетний. Наклад 300. Ум. друк. арк. 7,2. Обл.-вид. арк. 10,0. Зам. № 211–5817.

Видавничо-поліграфічний центр "Київський університет" 01601, Київ, б-р Т. Шевченка, 14, кімн. 43 🖀 (38044) 239 32 22; (38044) 239 31 72; (38044) 239 31 58; факс (38044) 239 31 28