

Volume 3 • Number 2 • 2016

ISSN 2312-4334

East European Journal of Physics



V.N. Karazin Kharkiv National University Publishing

ISSN 2312-4334

MINISTRY OF EDUCATION AND SCIENCE OF UKRAINE

East European Journal of Physics

Volume 3 · Number 2

2016

East European Journal of Physics

EEJP is an international peer-reviewed journal devoted to experimental and theoretical research on the nuclear physics, cosmic rays and particles, high-energy physics, solid state physics, plasma physics, physics of charged particle beams, plasma electronics, radiation materials science, physics of thin films, condensed matter physics, functional materials and coatings, medical physics and physical technologies in an interdisciplinary context.

Published quarterly in hard copy and online by V.N. Karazin Kharkiv National University Publishing.
ISSN 2312-4334 (Print), ISSN 2312-4539 (Online)

The editorial policy is to maintain the quality of published papers at the highest level by strict peer review.

Approved for publication by the Academic Council of the Karazin Kharkiv National University (May 27, 2016) EEJP registered by the order of Ministry of Education of Ukraine № 747 of 07.13.2015, and is included in the list of scientific specialized editions of Ukraine, which can be published results of dissertations for the degree of doctor and candidate of physical and mathematical sciences.

Editor-in-Chief

Azarenkov N.A., Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine

Deputy editor

Girka I.O., Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine

Executive Secretary

Girnyk S.A., Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine

Editorial Board

Adamenko I.N., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Akulov V.P., City University of New York, USA

Antonov A.N., Institute of Nuclear Research and Nuclear Energy, Sofia, Bulgaria

Barannik E.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Beresnev V.M., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Berezhnoy Yu.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Bizyukov A.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Bragina L.L. STU Kharkiv Polytechnical Institute, Ukraine

Broda B., University of Lodz, Poland

Budagov Yu.A., Joint Institute of Nuclear Research, Dubna, Russia

Dovbnya A.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Dragovich B.G., University of Belgrade, Serbia

Duplij S.A., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Garkusha I.E., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Gofman Yu., Jerusalem College of Technology, Israel

Grekov D.L., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Karnaukhov I.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Khodusov V.D., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Kondratenko A.N., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Korchin A.Yu., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Krivoruchenko M.I., Institute for Theoretical and Experimental Physics, Moscow, Russia

Lavrinenko S.D., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Lazurik V.T., Karazin Kharkiv National University, Ukraine

Mel'nik V.N., Institute of Radio Astronomy, Kharkiv, Ukraine

Merenkov N.P., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Neklyudov I.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Noterdaeme J.-M., Max Planck Institute for Plasma Physics, Garching, Germany

Nurmagambetov A.Yu., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Onyschenko I.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Ostrikov K.N., Plasma Nanoscience Centre Australia, Clayton, Australia

Peletminsky S.V., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Pilipenko N.N., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Radinschi I., Gheorghe Asachi Technical University, Iasi, Romania

Slyusarenko Yu.V., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Smolyakov A.I., University of Saskatchewan, Saskatoon, Canada

Shul'ga N.F., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Tkachenko V.I., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Voyevodin V.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Yegorov O.M., NSC Kharkiv Institute of Physics and Technology, Ukraine

Editorial office

Department of Physics and Technologies, V.N. Karazin Kharkiv National University

Kurchatov av., 31, office 402, Kharkiv, 61108, Ukraine

Tel: +38-057-335-18-33,

E-mail: eejp@karazin.ua,

Web-pages: <http://eejp.univer.kharkov.ua>, <http://periodicals.karazin.ua/eejp> (Open Journal System)

Certificate of State registration No.20644-10464P, 21.02.2014

East European Journal of Physics

Volume 3 Number 2 2016

ORIGINAL PAPERS

- The Application of the GA-BP Neural Network Algorithm in the High-Energy Physics** 4
M.Y. El-Bakry, E.A. El-Dahshan, A. Radi, M. Tantawy, M.A. Moussa
- Influence Of Mechanical Micro-Defects On The Local Polarization In Devices Based On Ferroelectrics** 15
A.T. Bogorosh, S.A. Voronov, V.F. Mazanko, I.O. Shmatko, O.A. Shmatko, A.G. Shayko-Shaikovsky
- Influence of the Additives of the Third Element In Alloy Cu-Ti On Energy of the Segregation of the Impurity During Cellular Precipitation of the Solid Solution** 26
S.I. Derevianko, A.K. Kuzniak, Ju.A. Liashenko, I.O. Shmatko, O.A. Shmatko
- Bremsstrahlung Formation in the Dual Energy Method for Radiography of the Unauthorized Embedding** 32
V.G. Rudychev, I.O. Girka, D.V. Rudychev, Y.V. Rudychev
- Use of Incoherent Scattering for Matrix Effects Correction in X-Ray Fluorescence Measurements of Ti, Mn, Fe and U Concentrations in Uranium Ores** 41
D.V. Kutnii, A.V. Medvediev, S.A. Vanzha
- Effect of Carbon on Physical and Structural Properties of FeB Iron Monoboride** 49
N.Yu. Filonenko, A.N. Galdina
- X-ray Diffraction on the Edge-Dislocation Neighborhood: Finite-Differential Approach** 54
D.G. Malykhin
- The Influence of the Dynamic Change of Ultrasound System Sensitivity Function on the Spectra of Doppler Response Signals** 61
E.A. Barannik, O.S. Matchenko
- Radon-222 Detection Using Beta-Decay Products** 65
I.I. Yakimenko, N.G. Styervoyedov, A.F. Shchus, G.M. Onyshchenko
- PERSONALITIES
- Yuriy Anatolievich Berezhnoy (80-th birthday)** 70

PACS: 11.80.-m, 13.85.-t, 84.35+I, 07.05.Tp.

THE APPLICATION OF THE GENETIC ALGORITHM-BACK PROPAGATION NEURAL NETWORK ALGORITHM IN THE HIGH-ENERGY PHYSICS

¹M.Y. El-Bakry, ^{2,3}E.A. El-Dahshan, ³A. Radi, ¹M. Tantawy, ^{1,4}M.A. Moussa

¹Ain Shams University, Faculty of Education, Physics Department, Roxi, Cairo, Egypt

²Egyptian E-Learning University- 33 El-mesah St., El-Dokki- Giza- Postal code 11566
e-mail: seldahshan@eelu.edu.eg

³Ain Shams University, Faculty of Sciences, Physics Department, Abbassia, Cairo, Egypt

⁴Buraydah Colleges, Al-Qassim, Buraydah, King Abdulaziz Road, East Qassim University, P.O.Box 31717, KSA
e-mail: moaaz2030@yahoo.com

Received April 18, 2016

Multiparticle production mechanism is one of the most phenomena that the high-energy physics concerns. In this work, the evolutionary genetic algorithm (GA) is used to optimize the parameters of the back-propagation neural networks (BPNN). The hybrid evolutionary-neuro model (GA-BPNN) was trained to simulate the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of positive and negative pions for $\bar{p} - \text{Au}$, $\bar{p} - \text{Ag}$ and $\bar{p} - \text{Mg}$ interactions at lab momentum (P_{lab}) = 100 GeV/c. Also, for total charged, positive and negative pions for $\bar{p} - \text{Ar}$, $\bar{p} - \text{Xe}$ interactions at $P_{\text{lab}} = 200$ GeV/c. Finally, total charged particles for $p - \text{Pb}$ collision at center-of-mass energy (\sqrt{s}) = 5.02 TeV are simulated. An efficient ANN network with different connection parameters (weights and biases) have been designed by the GA to calculate and predict the rapidity distribution as a function of the lab momentum (P_{lab}), mass number (A) and the number of particles per unit solid angle (Y). Our simulated results have been compared with the experimental data and the matching has been clearly found. It is indicated that the developed GA-BPNN model for rapidity distribution was more successful.

KEY WORDS: High and ultrahigh energy physics, hadron-nucleus (h-A) interactions, rapidity distribution, modeling and simulation, hybrid evolutionary-neuro model

ЗАСТОСУВАННЯ ГЕНЕТИЧНОГО АЛГОРИТМУ-АЛГОРИТМУ НЕЙРОННОЇ МЕРЕЖІ ЗІ ЗВОРОТНИМ ЗВ'ЯЗКОМ У ФІЗИЦІ ВИСОКИХ ЕНЕРГІЙ

Механізм створення багаточасткових пучків є одним із великого ряду явищ, пов'язаних з фізикою високих енергій. У цій роботі використовується еволюційний генетичний алгоритм (GA), для оптимізації параметрів нейронних мереж із зворотним зв'язком (BPNN). Гібридна еволюційна нейромоделювання (GA - BPNN) була підготовлена для моделювання розподілу швидкості $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ потоків позитивних і негативних піонів достатніх для взаємодії $\bar{p} - \text{Au}$, $\bar{p} - \text{Ag}$ and $\bar{p} - \text{Mg}$, при імпульсі в лабораторній системі (P_{lab}) = 100 GeV/c, а також для усього об'єму заряджених позитивних і негативних піонів для взаємодій $\bar{p} - \text{Ar}$, $\bar{p} - \text{Xe}$ при $P_{\text{lab}} = 200$ GeV/c. І, нарешті, моделюється повний об'єм заряджених часток для зіткнення $p - \text{Pb}$ при енергії в системі центра мас (\sqrt{s}) = 5.02 TeV. За допомогою GA розроблена ефективна мережа ANN з різними параметрами зв'язку (вага і зміщення), щоб вичислити і передбачити розподіл швидкостей як функцію експериментального імпульсу, масового числа (A) і кількості часток на телесний кут (Y). Було проведено порівняння результатів нашого моделювання з експериментальними даними, і була визначена їх відповідність один одному. Відмічено, що модернізована модель GA - BPNN для розподілу швидкості дає вищі результати.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: фізика високих і надвисоких енергій, адронно-ядерні (h - A) взаємодії, розподіл швидкостей, розрахунок і моделювання, гібридна еволюційна нейромоделювання

ПРИМЕНЕНИЕ ГЕНЕТИЧЕСКОГО АЛГОРИТМА – АЛГОРИТМА НЕЙРОННОЙ СЕТИ С ОБРАТНОЙ СВЯЗЬЮ В ФИЗИКЕ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Механизм создания многочастичных пучков является одним из большого ряда явлений, связанных с физикой высоких энергий. В этой работе используется эволюционный генетический алгоритм (GA) для оптимизации параметров нейронных сетей с обратной связью (BPNN). Гибридная эволюционная нейромоделювання (GA-BPNN) была подготовлена для моделирования распределения скорости $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ потоков положительных и отрицательных пионов достаточных для взаимодействия $\bar{p} - \text{Au}$, $\bar{p} - \text{Ag}$ and $\bar{p} - \text{Mg}$ при импульсе в лабораторной системе (P_{lab}) = 100 ГэВ/c, а также для всего объема заряженных положительных и отрицательных пионов для взаимодействий $\bar{p} - \text{Ar}$, $\bar{p} - \text{Xe}$ при $P_{\text{lab}} = 200$ ГэВ/c. И, наконец, моделируется полный объем заряженных частиц для столкновения $p - \text{Pb}$ при энергии в системе центра масс (\sqrt{s}) = 5.02 ТэВ. С помощью GA разработана эффективная сеть ANN с различными параметрами связи (вес и смещение), для вычисления и предсказания распределения скоростей как функции экспериментального импульса (P_{lab}), массового числа (A) и количества частиц на телесный угол (Y). Проведено сравнение результатов нашего моделирования с экспериментальными

данными, и было определено их соответствие друг другу. Отмечено, что модернизированная модель GA-BPNN для распределения скорости дает более высокие результаты.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: физика высоких и сверхвысоких энергий, адронно-ядерные (h-A) взаимодействия, распределение скоростей, расчет и моделирование, гибридная эволюционная нейромодель

Rapidity distribution of hadron-nucleus (h-A) interactions have been studied as one example of the parameters controlling multiparticle production mechanism in high and ultrahigh energy physics. Many models studied the hadron structure [1-5] and the interactions between hadrons and nuclei such as fragmentation model [6-8], quark model [9-11], the three-fireball model [12] and many more.

Our group [13-16] studied the applications of artificial intelligence and the evolutionary computation techniques such as neural network, adaptive fuzzy inference system, genetic programming, genetic algorithm, hybrid technique model and many others to solve many complex (nonlinear) problems in high-energy physics and showed best fitting with the corresponding experimental data in comparison with the conventional techniques.

With the emergence of the computer simulation technology, it greatly reduces the time, space and cost. Therefore, the computer simulation technology has become a powerful tool for the research of the high-energy physics and its development will have a positive reference and guiding role for the experimental physicists. We used the hybrid Genetic Algorithm (GA) and Back-propagation Neural Network (BPNN) technique (GA-BPNN) [15] as a tool to discover the equations that govern some sub-nuclear interactions at high and ultrahigh energies. Based on this idea, according to the real data of the rapidity distribution for hadron-nucleus (h-A) collisions taken in ALICE (2013) and in many other labs, this paper focused on the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of positive and negative pions for (antiproton (\bar{p}) –nucleus (A)) \bar{p} –Au, \bar{p} –Ag and \bar{p} –Mg interactions at Lab Momentum (P_{Lab}) =100 GeV/c [17], total charged, positive and negative pions for \bar{p} –Ar, \bar{p} –Xe interactions at P_{Lab} = 200 GeV/c [18-20] and total charged particles for (proton (P) –nucleus (A)) p–Pb collision at center-of mass energy (\sqrt{s}) = 5.02 TeV [21]. In addition, it established intelligent prediction model by means of smart algorithm. Through the constant optimization of the algorithms and models, it achieved more accurate prediction of unknown data for rapidity distribution.

The research of this topic has a certain reference value for experimental high-energy physicists, and has a positive guiding significance in the field of high-energy physics.

In this article, hybrid model has been used to discover a function that computes the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of positive and negative pions for \bar{p} -Au, \bar{p} -Ag and \bar{p} -Mg interactions at 100 GeV/c [17], the rapidity distribution of created (total charged, positive and negative) pions for \bar{p} –Ar, \bar{p} –Xe collisions at P_{Lab} =200 GeV/c [18-20] and the rapidity distribution of total charged particles for p–Pb collision at (\sqrt{s}) = 5.02 TeV [21]. The discovered functions produced by the hybrid model show an excellent matching when they have been compared to the corresponding experimental data [18-21]. This article is organized as follows; Section **PREDICTION MODEL OF RAPIDITY DISTRIBUTION FOR (h-A) COLLISIONS BASED ON BPNN ALGORITHM** gives the outlines to the basics of the BP Algorithm. Section **SIMULATION MODELING** reviews the Genetic Algorithm and Back-Propagation Neural Network models and how to be implemented. Modeling of the rapidity distribution using GA-BPNN is provided in Section **MODEL OF GA-BP OF THE RAPIDITY DISTRIBUTION FOR (h-A) COLLISIONS**. Section **RESULTS AND DISCUSSIONS** shows the simulation results and discussion. Finally, conclusions are provided in Section **CONCLUSIONS**.

PREDICTION MODEL OF RAPIDITY DISTRIBUTION FOR (h-A) COLLISIONS BASED ON BPNN ALGORITHM

We have performed the modeling of the inclusive interaction

$$\bar{p} - \text{Au}, \bar{p} - \text{Ag}, \bar{p} - \text{Mg} \rightarrow \pi^{\pm} + X \quad (1)$$

at momentum of antiprotons 100 GeV/c [18]. This experiment was performed with the Fermi lab 30-inch bubble chamber and downstream Particles Identifier to study inclusive charged pion production in the high-energy interactions of \bar{p} with thin foils of magnesium, silver and gold. All data are similar and display the following features. We observe that in the backward direction [18] they rise rapidly with increasing A. As the rapidity increases, the A dependence becomes weaker and in the region $y \approx 4.5$ the distributions become almost independent of A. We also do not observe any region where a rapidity plateau exists.

Experimental data on antiproton-nucleus (\bar{p} –A) collisions [18-20] at momentum of antiprotons 200 GeV/c were performed to study inclusive total charged, positive and negative pion production in the high-energy interactions of \bar{p} with thin foils of Argon and Xenon.

The pions rapidity distribution of shower and negative particles for \bar{p} –Xe and \bar{p} –Ar in center-of-mass system

(CMS) is shifted by 3 units, when the projectile incident momentum is $P_{Lab} = 200$ GeV/c, from the laboratory system using Eq. (2).

$$y' = y + \frac{1}{2} \ln \left(\frac{1-\beta}{1+\beta} \right), \tag{2}$$

where, y' CMS rapidity, β is CMS velocity and y is lab system rapidity which is defined as [22-24],

$$y = \frac{1}{2} \ln \left(\frac{E + P_{||}}{E - P_{||}} \right) = \sinh^{-1} \left(\frac{P_{||}}{\mu} \right) \tag{3}$$

E and $P_{||}$ are the total energy and longitudinal momentum of particle (C) produced in the inclusive process (hadron-nucleus),

$$h + A = C + X \quad (X \text{ means any other particle or particles})$$

Where, h is any hadron, A is the nucleus.

The quantity μ is the transverse mass of the pion, which is defined as,

$$\mu = (m_o^2 + p_t^2)^{1/2}, \tag{4}$$

where, m_o is the rest mass of the pion and p_t is its transverse momentum

p–Pb collisions [21] at center-of-mass energies of $\sqrt{s} = 5.02$ TeV have recently been performed at the LHC. The rapidity dependence is somewhat flat and slightly steeper in the higher energy p–Pb collisions.

The GA-BPNN Algorithm has been used to determine gradually the optimal number of neurons in the hidden layers of neural network as well as simulate and predict eventually the rapidity distribution for (h-A) collisions at $P_{Lab} = 100, 200$ GeV/c and $\sqrt{s} = 5.02$ TeV.

We recorded that the BP network needs the evolution generations to meet preset accuracy requirements in the different numbers of units in hidden layer. Moreover, after the evolution of each network was completed, we input test data to verify its accuracy and calculated the respective prediction error of average. After the network structure was determined, we input training data for network training, saved network structure after training, and input forecasting data validation. In addition, we analyzed the prediction error between the actual output data and the desired ones, thus evaluating the performance of BP network prediction of the rapidity distribution for (h-A) collisions at $P_{Lab} = 100, 200$ GeV/c and $\sqrt{s} = 5.02$ TeV.

The BP neural network can achieve the detection of the rapidity distribution for (h-A) collisions at 100, 200 GeV/c and 5.02 TeV, but the accuracy and speed need to further improve. BP algorithm only adjusted connection weights of neural network from the local angle but did not examine the whole learning process from the global perspective. Therefore, it is easy to converge to local minimum.

SIMULATION MODELING

Artificial neural network

ANNs are simple mathematical models of nervous systems and adaptive biological learning [25]. These soft data based computational methods can model multidimensional non-linear processes and represent complex input–output relation. ANNs are one of the best candidates for experimental data modeling, function approximation and on-line data processing.

ANNs structure consists of a set of processing units, normally arranged in layers, known as neurons. These neurons interact with weighted connection known as synaptic weights. A neuron performs certain computation called activation function:

$$f(x) = \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}} \tag{5}$$

exerted on sum of weighted inputs of the neuron (x), as indicated in the below equation

$$O = f \left(b + \sum_i w_i p_i \right), \tag{6}$$

where O is the neuron output, f the activation (transfer) function, b the bias, w_i the neuron weight and p the neuron input. Weights can be determined adaptively by learning algorithm and can store the acquired knowledge. The learning algorithm adjusts weights to handle given problems. In most cases, the ANNs are trained by a set of input–output data. This training process is known as supervised learning [25].

The number of neurons in input and output layers is the same as the number of inputs and outputs of the problem, respectively. Number of hidden layers (between input layer and output layer) and number of their neurons are free

parameters and usually can be determined and optimized by trial and error. Multi Layer Perceptrons (MLPs) are extensively applied to feed forward ANNs that need supervised learning. Usually, training and testing data shall be normalized to increase the performance of network. A MLP with one or more hidden layers can approximate any non-linear mapping to any accuracy degree [25].

Genetic algorithm

The Genetic Algorithm is a type of evolutionary computation [26]. It mimics two mechanisms of natural selection and evolution of biological species [26]. This iterative probabilistic searching method is used in complex multi-dimensional optimization problems resulting in a fittest solution. The GA is based on a constant-size population of chromosomes which can be expressed as a string of bits, 0 or 1 s, corresponding to a possible solution to the problem. A chromosome includes some segments, each of them corresponding to encoding of problem variables. An initial population is randomly produced. In this population, the fitness function of each chromosome is evaluated. Next, certain numbers of them are selected as parents for reproduction [26]. Fitter chromosomes have more chance to be selected. Each pair of chromosomes is randomly selected and merged by crossover operator and offspring produced thereby. One or more bits of a random selected chromosome of offspring are altered by a mutation operator. Mutation enables the optimization to get out of local optima trap and to find global optima. Offspring and some of parents provide subsequent population. The evolution cycle is continued until algorithm converges to the best chromosome which represents the optimal solution [26]. We used Mean Squared Error (MSE) as a tool to calculate the performance of the selected topology to the considered output (rapidity distribution).

The difference between the real rapidity distribution and estimated rapidity distribution can be represented by Mean Squared Error (MSE) standard:

$$\text{MSE} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_1(i) - x_2(i))^2, \quad (7)$$

where $x_1(i)$ and $x_2(i)$ are the values of real and calculated rapidity distribution in time domain and N is number of sample points.

MODEL OF GA-BPNN OF THE RAPIDITY DISTRIBUTION FOR (h-A) COLLISIONS

Genetic algorithm does not use external information in the process of the evolutionary search and is only based on the fitness function. Therefore, it is crucial for choosing fitness function, which directly affects the convergence rate of genetic algorithm and the ability to find the optimal solution. Since the objective function is error sum of squares of the neural network, and for getting its minimum value, so the fitness function adapts the inverse of error function. The selecting operation used fitness proportion, which is the most common way, the cross-used the method of arithmetic crossover, and variation method used the operation of non-uniform mutation.

If the value of the fitness function, the optimal individual corresponding to, met accuracy requirements or reached iterations that we set, or the range of the average fitness value changed lastly that was less than a certain constant and over a certain algebra, then we finished the training. At this time, we set the individual that had the largest fitness as output of the optimal solution, and it was the initial weight and threshold that need to be optimized. Otherwise, we continued the cycle. After reordering the current parent and offspring, we chose N individuals that had higher fitness value as the next generation of the group. In addition, we computed its fitness and trained them again until satisfying the termination conditions of the above.

We decoded the optimal solution, which was obtained from genetic algorithm, and we assigned them to BP network without starting training as initial weights of BP network. Then, according to BP algorithm, we input training samples for training and learning of the network and calculated the error between the output value and the expected value. If it was beyond the precision requirement, then we turned to the back propagation process and returned the error signal along the way. At the same time, according to the size of the error of each layer, we adjusted its weights and thresholds layer and layer. Until the error was less than given value $5.98 e^{-04}$, or it reached the training number predetermined, then we ended BP algorithm. We saved the weight and the threshold of hidden layer that had been trained as the new initial weights and the threshold of the network and then input the test sample for simulation.

The setting of BP algorithm parameters was as follows: the rate of the initial learning was 0.08, number of epochs = 2000, the transfer function of input layer to hidden layer was ‘tansig’ (tangent sigmoid function $\tan \text{sig}(x) = \left(\frac{2}{1 + e^{-2x}} - 1 \right)$; x is the summation of the weighted input values to the processing node) and hidden layer to output layer was ‘purelin’ (linear transfer function); the training function was Levenberg Marquardt (LM) algorithm (trainlm) [26]; the index of error was set as $5.98 e^{-04}$.

We selected 4 groups of data from experimental samples as training samples to train the BP neural network. In addition, we selected the remaining data as test samples to analyze the degree of fitting between the measured values and the predicted values of neural network model.

Single neural network with four different combination of network parameters (connection weights “W” and biases

“b”) was used to calculate and predict the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ for positive and negative pions for $\bar{p}-\text{Au}, \bar{p}-\text{Ag}$ and $\bar{p}-\text{Mg}$ interactions at $P_{\text{Lab}}=100$ GeV [17], the rapidity distribution of created (total charged, positive and negative) pions for $\bar{p}-\text{Ar}, \bar{p}-\text{Xe}$ collisions at $P_{\text{Lab}}=200$ GeV/c [18-20] and the rapidity distribution of total charged particles for $p-\text{Pb}$ collision at $\sqrt{s}=5.02$ TeV [21]. Four different experimental data for the different interactions were used in the training phase to develop the GA-BPNN model. The training data (experimental data) were used to construct the ANN configuration and to determine the connection weights “W” and biases ”b” based on the GA algorithm. The testing data were used for testing the generalization capability of the model. Therefore, four different combinations of network connection parameters (weights and biases) were used in the training phase. Connection weights, and biases for the final model are given in (Appendix A).

RESULTS AND DISCUSSIONS

To illustrate the performance of genetic algorithm for designing and optimizing the model parameters (weights and the threshold) of neural networks, this work used the same sample data. That is, we randomly selected 4 groups of data as the training sample and the rest was selected as test data to observe the training and testing performance of rapidity distribution for (h-A) collisions at $P_{\text{Lab}}=100, 200$ GeV/c, $\sqrt{s}=5.02$ TeV by the GA-BPNN.

The proposed GA-BPNN model of the ($\bar{p}-\text{Au}, \bar{p}-\text{Ag}$ and $\bar{p}-\text{Mg}$) collision at $P_{\text{Lab}}=100$ GeV/c, $\bar{p}-\text{Ar}, \bar{p}-\text{Xe}$ at $P_{\text{Lab}}=200$ GeV/c and $p-\text{Pb}$ collisions at $\sqrt{s}=5.02$ TeV has three inputs and one output. The inputs are: the lab momentum (P_{Lab}), the CMS rapidity (Y) of negative, positive, charged pions and the mass number (A) while the output is the rapidity distribution of negative, positive and charged pions $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$. The ANN model is simply shown as a block diagram in Fig. 1.

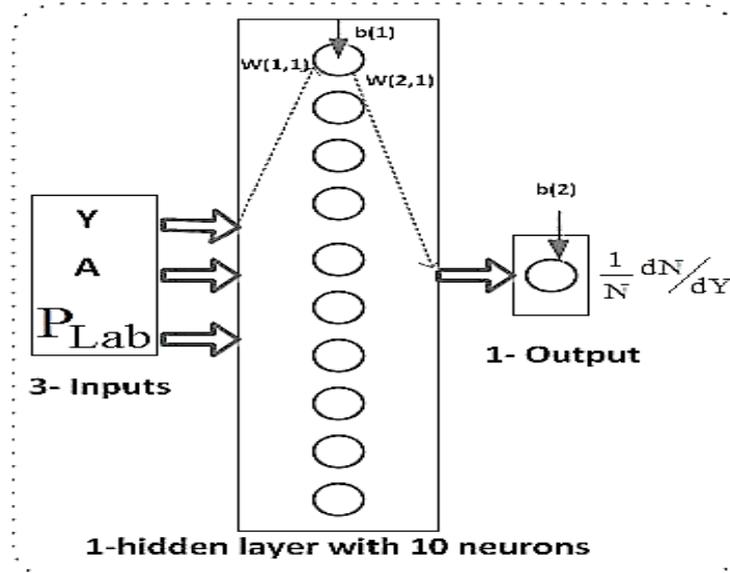


Fig.1. A block diagram of the ANN based modeling.

Using this input – output arrangement, the optimal network with four different connection parameter configurations (weights and biases) were tried to achieve good mean sum squared error (MSE) and good performance for the positive and negative pions for $\bar{p}-\text{Au}, \bar{p}-\text{Ag}$ and $\bar{p}-\text{Mg}$ interactions at $P_{\text{Lab}}=100$ GeV [17] the rapidity distribution of created (total charged, positive and negative) pions for $\bar{p}-\text{Ar}, \bar{p}-\text{Xe}$ collisions at $P_{\text{Lab}}=200$ GeV/c [18-20] and the rapidity distribution of total charged particles for $p-\text{Pb}$ collision at $\sqrt{s}=5.02$ TeV [21].

The first configuration is dedicated for studying the negative pions of rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ for $\bar{p}-\text{Au}, \bar{p}-\text{Ag}$ and $\bar{p}-\text{Mg}$ collisions at $P_{\text{Lab}}=100$ GeV/c and $\bar{p}-\text{Ar}, \bar{p}-\text{Xe}$ collisions at $P_{\text{Lab}}=200$ GeV/c. Also, one hidden layer of 10 neurons and the output layer consisting of one neuron (see Fig. 1).

The second configuration is used to simulate $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ for the same interactions but for the positive pions.

The third and fourth configurations of ANN, are used for charged particles resulting from $\bar{p}-\text{Ar}, \bar{p}-\text{Xe}$ collisions at $P_{\text{Lab}}=200$ GeV/c and $p-\text{Pb}$ collisions at $\sqrt{s}=5.02$ TeV respectively.

The transfer functions of the hidden layers were chosen to be a tan sigmoid for the all networks, while the output layer was chosen to be a pure line. The trained algorithm which used to train the ANN model (for the four interactions) is LM optimization technique, with number of epochs=2000.

The performance of order 10^{-4} (MSE) for the developed neural network (three inputs – one hidden layer with ten neurons and one output) at the different four configurations was around 0.0002. (See Fig. 2(a-d). The GA parameters were: populations size: 70 mutation rate: 0.01, cross-over rate: 0.1 and fitness function: MSE).

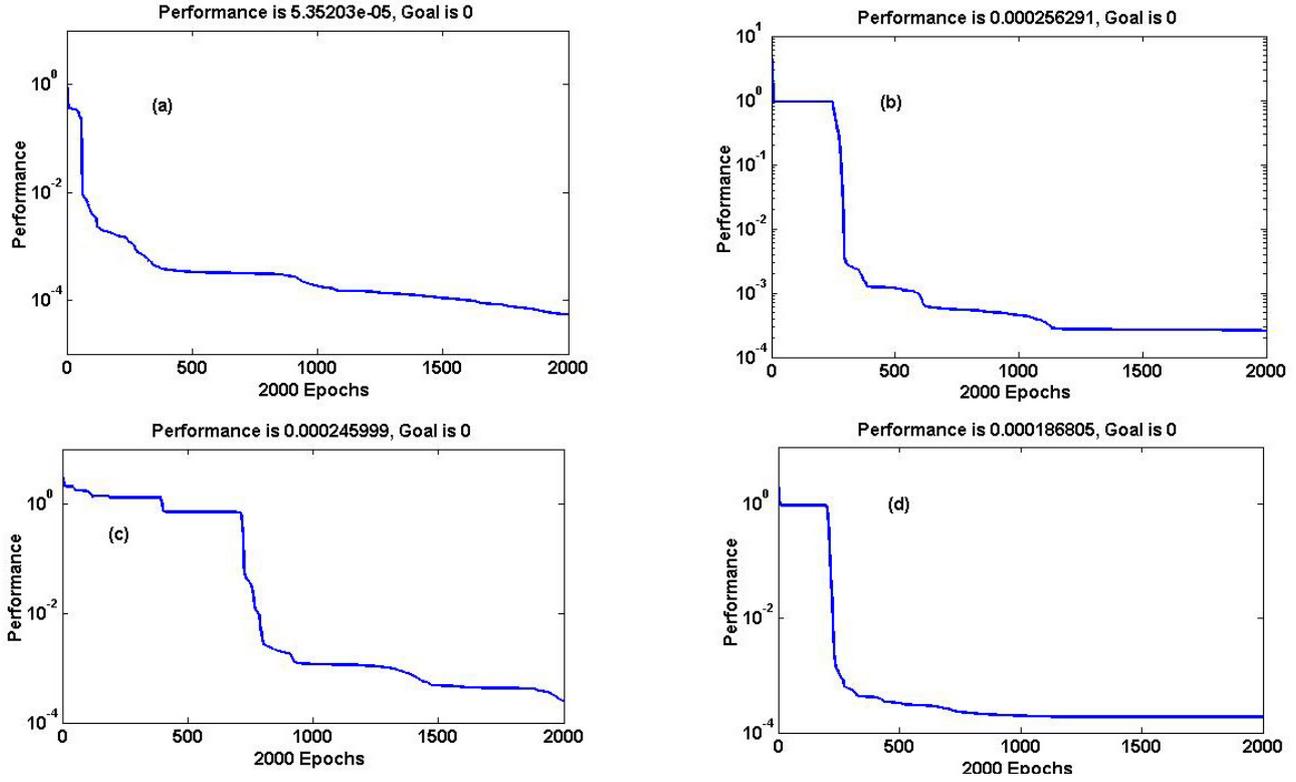


Fig. 2. The performance of the developed GA-BPNN model for (h-A) interactions
a) negative pions ($P_{Lab} = 100$ and 200 GeV/c), b) positive pions ($P_{Lab} = 100$ and 200 GeV/c), c) charged pions ($P_{Lab} = 200$ GeV/c) and
d) charged particles $\sqrt{s} = 5.02$ TeV

The obtained equation (is not an explicit function in the inputs and the output) which describes the four interactions is given by:

$$\frac{1}{N} \frac{dN}{dY} = \text{pureline} [\{ \text{net.LW} (2,1). \tan \text{sigmoid} .$$

$$\{ \text{net.IW} (1,1).P + \text{net.b}(1) \} + \text{net.b}(2) \}] , \quad (8)$$

where, P: is the input which consists of three parameters, the number of particles per unit solid angle (Y), lab momentum (P_{Lab}) (or center-of-mass energy (\sqrt{s})) and mass number (A).

pure line: is a linear transfer function and tan sigmoid is a hyperbolic tangent sigmoid transfer function (both of them are mathematical MATLAB transfer functions).

net.IW{1,1}: linked weights between the input layer and hidden layer.

net.LW{2,1}: linked weights between the two hidden layers.

net.b{1} : is the bias of the first hidden layer.

net.b{2} : is the bias of the second hidden layer.

Rapidity distribution of negative, positive and charged pions produced from \bar{p} - Au, \bar{p} - Ag and \bar{p} - Mg collisions at $P_{Lab} = 100$ GeV/c, \bar{p} - Ar, \bar{p} - Xe collisions at $P_{Lab} = 200$ GeV/c and p - Pb collisions at $\sqrt{s} = 5.02$ TeV have been simulated using Eq. (8) and compared with the corresponding experimental data.

Results of the h-A based GA-BPNN, showed in Figs. (3a,b,c,d and e (for prediction)) and in Figs. 4a,b,c,d and e (for prediction)), (5a,b) and Fig. 6 give an almost exact fitting with the experimental data. This gives the GA-BPNN the provision of a wide usage in modeling of high energy physics.

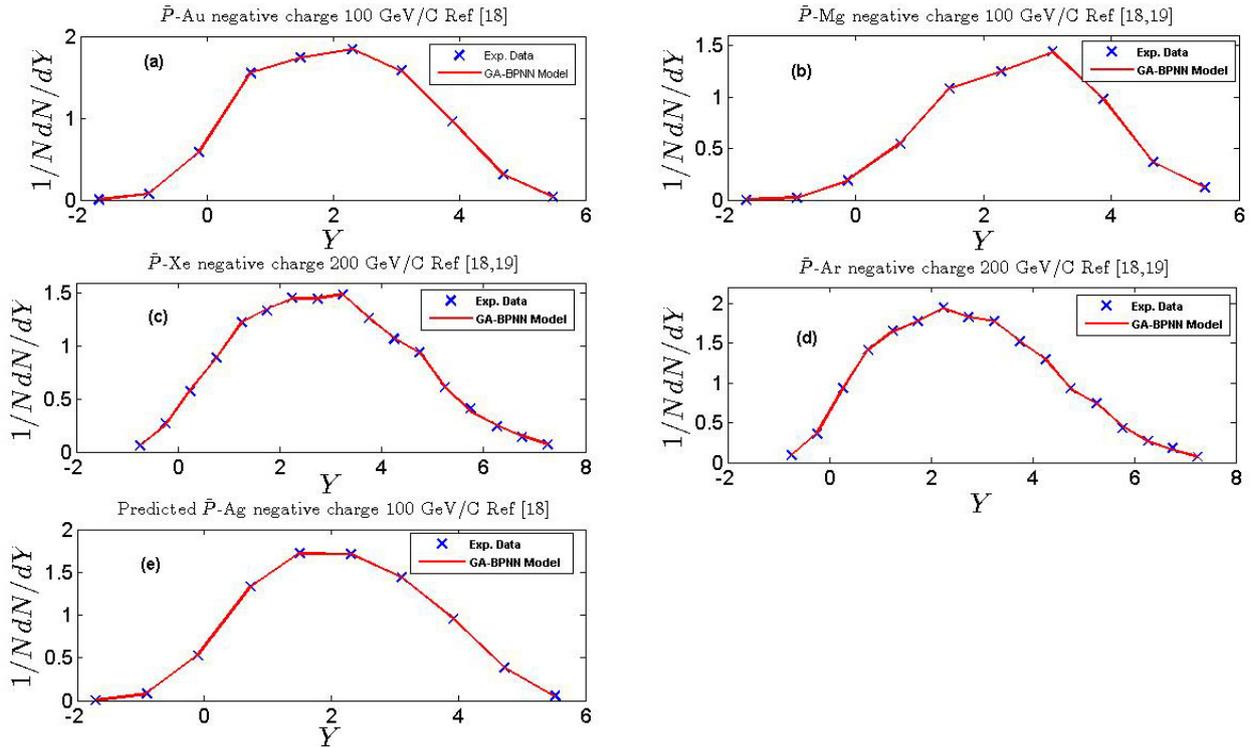


Fig. 3. Simulation of the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of negative pions

a) \bar{p} - Au, b) \bar{p} - Mg at $P_{Lab}=100$ GeV/c, c) \bar{p} - Xe, d) \bar{p} - Ar at $P_{Lab}=200$ GeV/c using GA-BPNN model, e) Prediction of negative pions for \bar{p} - Ag at $P_{Lab}=100$ GeV/c using GA-BPNN model (X) experimental data taken from Refs. [18, 19], (—) GA-BPNN model.

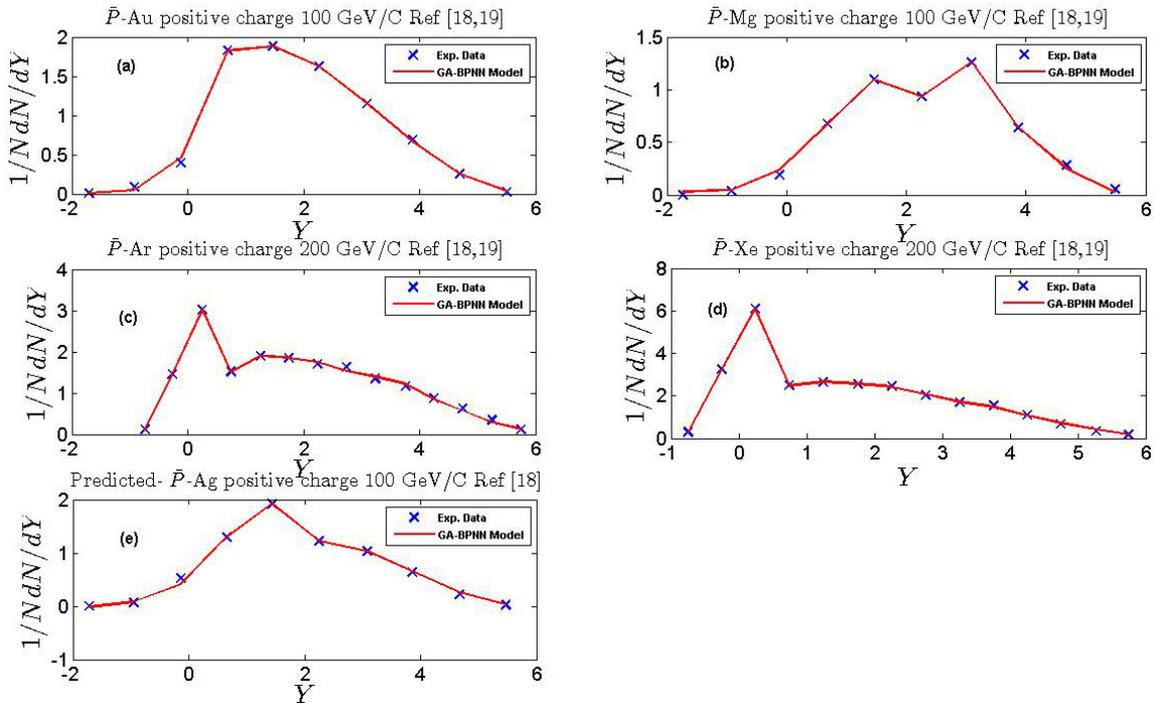


Fig. 4. Simulation of the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of positive pions

a) \bar{p} - Au, b) \bar{p} - Mg at $P_{Lab}=100$ GeV/c, c) \bar{p} - Ar, d) \bar{p} - Xe at $P_{Lab}=200$ GeV/c using GA-BPNN model, e) Prediction of positive pions for \bar{p} - Ag at $P_{Lab}=100$ GeV/c using GA-BPNN model, (X) experimental data taken from Ref. [18-19], (—) GA-BPNN model.

GA-BPNN model has been shown to be a useful method for modeling the h-A interactions. All the figures showed a clear and excellent match to the experimental data [17-21].

Also, from these figures we can see that the proposed GA-BPNN model in this paper can describe and predict effectively sub nuclear interactions at high and ultrahigh energies.

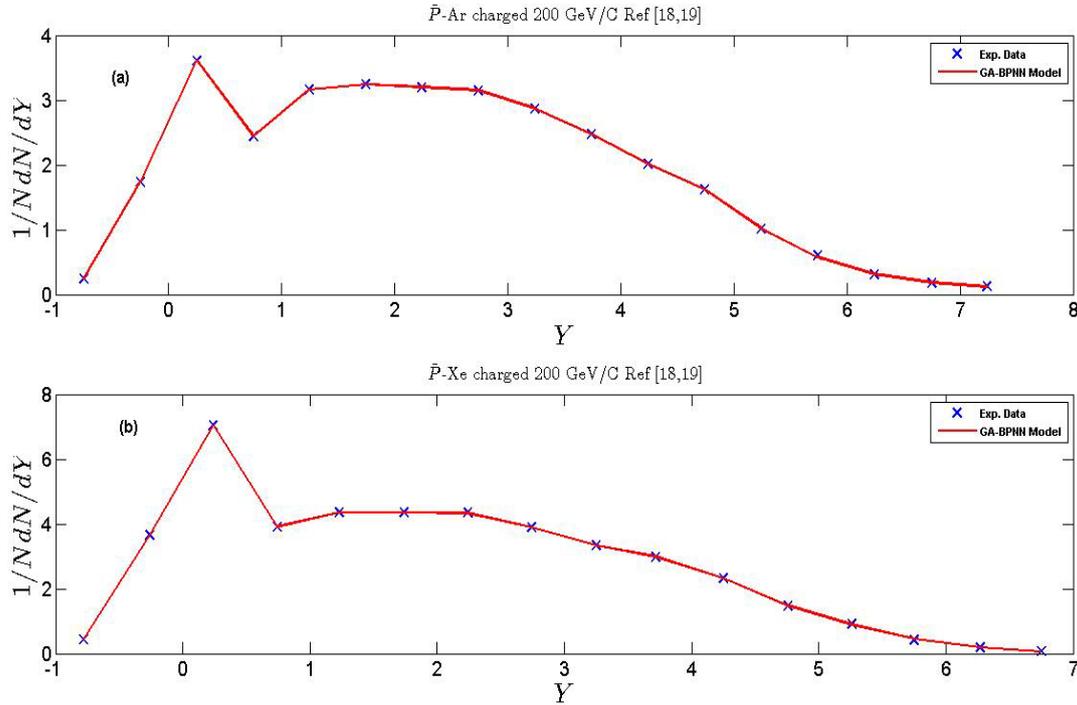


Fig. 5. Simulation of the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of charged pions

a) \bar{p} – Ar, b) \bar{p} – Xe at $P_{Lab} = 200$ GeV/c using GA-BPNN model, (X) experimental data taken from Refs. [18, 19], (—) GA-BPNN model.

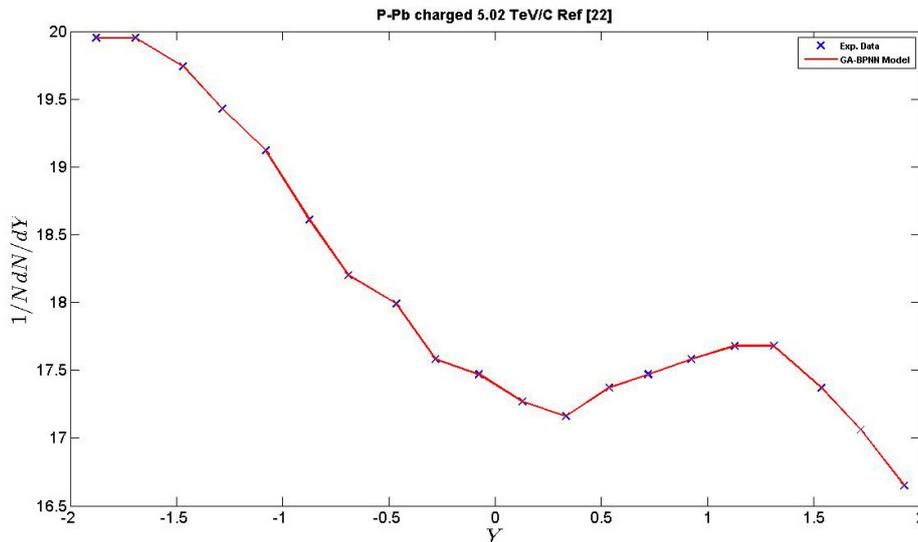


Fig. 6. Simulation of the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ of charged particles for p – Pb at $\sqrt{s} = 5.02$ TeV using GA-BPNN model, (X) experimental data taken from Ref. [22], (—) GA-BPNN model.

CONCLUSIONS

The traditional mathematical models that studied the rapidity distribution $\left(\frac{1}{N} \frac{dN}{dY}\right)$ have some defects in different degrees, which cannot accurately explain the phenomenon of multiparticle production mechanism. This paper introduced two intelligent algorithms by consulting relevant references, such as neural network and genetic algorithm,

to build the GA-BPNN model of rapidity distribution and implement relevant optimization. The rapidity distribution of negative, positive and charged pions for $\bar{p} - \text{Au}, \bar{p} - \text{Ag}$ and $\bar{p} - \text{Mg}$ interactions at $P_{\text{Lab}}=100$ GeV/c and for $\bar{p} - \text{Ar}, \bar{p} - \text{Xe}$ interactions at $P_{\text{Lab}}=200$ GeV/c and $p - \text{Pb}$ collisions at $\sqrt{s}=5.02$ TeV have been simulated using Eq.(8) and compared with the corresponding experimental data. Finally, we conclude that GA-BPNN model can be used as a suitable approach in predicting selected observables of high and ultrahigh energy physics interactions.

REFERENCES

1. Tantawy M., El-Mashad M., El-Bakry M.Y. Multiparticle Production Process in High Energy Nucleus-Nucleus Collisions // *Ind. J. Phys.* – 1998. – Vol. 72A. – No.1. – P.73-82.
2. Tantawy M., El Mashad M., Gamiel S., El Nagdy M.S. Multiplicity distribution of heavy particles for hadron–nucleus interactions // *Chaos Soliton Fract.* – 2002. – Vo1.3. – No.4. – P.919–928.
3. Ranft J. Secondary particle production according to the thermodynamical model and new experimental data // *Phys. Lett. B.* – 1970. – Vol.31. – No.8. – P.529-532.
4. Fermi E. High Energy Nuclear Events // *Prog. Theor. Phys.* – 1950. – Vol.5. – No.4. – P.570 -583.
5. Fermi E. Angular Distribution of the Pions Produced in High Energy Nuclear Collisions // *Phys. Rev.* – 1951. – Vol 81. – No.5. – P.683-687.
6. Jacob M., Slansky R. Inclusive pion distributions at present machine energy // *Phys. Lett. B.* – 1971. – Vol. 37. – No.4. – P. 408-412.
7. Hwa R.C. Multiplicity Distribution and Single-Particle Spectrum in the Diffractive Model // *Phys. Rev. Lett.* – 1971. – Vol.26. – No.18. – P.1143.
8. Hwa R.C. Bootstrap Model for Diffractive Processes: Complementarity of the Yang and Regge Models // *Phys. Rev. D.* - 1970. – Vol.1. – No.6. – P.1790.
9. Kisslinger L.S. Nuclear physics and quark/gluon QCD // *Nucl. Phys. A.* – 1985. – Vol.446. – No.1. – P.479-488.
10. Gyulassy M. Introduction to QCD thermodynamics and the quark-gluon plasma // *Progress in Particle and Nuclear Physics.* - 1985. – Vol.15. – P.403-442.
11. Nambu Y. The confinement of quarks // *Sci Am.* – 1976. – Vol.235. – No.45. – P. 48-61.
12. Xu, C., Wei-Qin, C., Ta-Chung, M., Chao-Shang, H. (1986). Statistical approach to nondiffractive hadron-hadron collisions: Multiplicity distributions and correlations in different rapidity intervals // *Phys. Rev. D.* – Vol.33. – No.5. – P. 1287.
13. El-Bakry S.Y., El-Dahshan E.S., El-Bakry M.Y. Total cross section prediction of the collisions of positrons and electrons with alkali atoms using Gradient Tree Boosting // *Ind. J. Phys.* 2011. – Vol. 85. – No.9. – P.1405-1415.
14. El-Bakry M.Y. Feed forward neural networks modeling for K–P interactions // *Chaos Soliton Fract.* – 2003. – Vol. 18. – No.5. –P. 995-1000.
15. El-Dahshan, E., Radi, A., El-Bakry M.Y. Artificial Neural Network and Genetic Algorithm Hybrid Technique for Nucleus-Nucleus Collisions // *Int. J. of Mod. Phys. C.* – 2008. – Vol.19. – No.12. – P.1787-1795.
16. El-Bakry M.Y., El-Dahshan E.S.A., El-Bakry S.Y. Mathematical modelling for pseudorapidity distribution of hadron-hadron collisions // *Eur. Phys. J. Plus.* – 2015. – Vol.130. – No.1. – P.1-7.
17. El-Bakry M.Y., El-Dahshan E.S.A., Radi A., Tantawy M., Moussa M.A. Modeling and Simulation for High Energy Sub-Nuclear Interactions Using Evolutionary Computation Technique // *Journal of Applied Mathematics and Physic* – 2016. - Vol.4. – No.1. – P. 53-65.
18. Whitmore J.J., Persi F., Toothacker W.S., Elcombe P.A., Hill J.C., Neale W.W., Ammar R. Inclusive charged pion production in hadron-nucleus interactions at 100 and 320 GeV/c // *Z. Phys. C Part Field.* – 1994. – Vol.62. – No.2. – P. 199-227.
19. De Marzo C., De Palma M., Distanto A., Favuzzi C., Germinario G., Lavopa P. & Spinelli P. Multiparticle production on hydrogen, argon, and xenon targets in a streamer chamber by 200-GeV/c proton and antiproton beams // *Phys. Rev. D.* – 1982. – Vol.26. – No.5. – P.1019.
20. Arneodo M., Arvidson A., Aubert J.J., Badelek B., Beaufays J., Bee C.P., Böhm, E. Comparison of multiplicity distributions to the negative binomial distribution in muon-proton scattering // *Z. Phys. C. Part Field.* – 1987. – Vol.35. – No.3. – P.335-345.
21. Kittel W. Combining inclusive and exclusive data analyses-what have we learned so far? // *J. Phys A-Math. Gen.* – 1973. – Vol.6. – No.6. – P.733.
22. Abelev B., Adam J., Adamová D., Adare A.M., Aggarwal M.M., Rinella G.A., Ahmad N. Pseudorapidity density of charged particles in p+ Pb collisions at $\sqrt{s_{\text{NN}}}=5.02$ TeV // *Phys. Rev. Lett.* – 2013. – Vol.110. – No.3. – P.032301.
23. Guettler K., Duff, B.G., Prentice M.N., Sharrock S.J., Gibson W.M., Duane A., Henning S. Inclusive production of low-momentum charged pions at $x=0$ at the CERN intersecting storage rings // *Phys. Lett. B.* – 1976. – Vol. 64. – No.1. – P.111-116.
24. Adamovich M.I., Chernjavskii M.M., Dremine I.M., Gershkovich A.M., Kharlamov S.P., Larionova V.G., Yagudina F.R. Clusters and the rapidity interval method. *Il Nuovo Cimento A.* – 1976. – Vol.33. – No.1. – P.183-194
25. Haykin S.S., et al. Neural networks and learning machines. – 2009. – Vol.3. Upper Saddle River: Pearson Education.
26. Chipperfield A.J., Fleming P.J. The MATLAB genetic algorithm toolbox / *Applied control techniques using MATLAB*, IEE Colloquium on. – 1995, January. – P.10/1-10/4.

III-Charged pions at 200 GeV/c.												
W(1,1)			W(2,1)									
0.615044	0.630483	-1	0.221102	0.178165	0.160589	0.54989	0.81778	0.45187	0.51432	0.18236	0.158732	0.884721
0.574515	-0.24201	0.96063										
0.336177	0.194511	-0.60853										
0.702738	-0.2709	0.544958										
-0.71844	0.026173	-0.42179										
-1	-0.63519	-0.60805										
0.001897	-0.4758	-0.87851										
0.202478	0.061921	-0.32841										
0.924715	0.041567	-0.69068										
0.33577	-0.07237	-0.99096										
b(1)			b(2)									
-0.02228			-0.20985									
0.544593												
0.987502												
-0.78824												
0.310195												
-0.74454												
-1												
-0.85451												
0.403024												
0.6188												

IV-Charged particles at 5.02 TeV.												
W(1,1)			W(2,1)									
-0.71416	-0.92088	0.325213	0.958607	0.93462	0.26646	0.752368	0.69604	0.652702	0.945123	0.106815	0.724473	0.198673
0.445217	0.081723	-0.03832										
0.395764	0.446531	0.926526										
-0.45433	0.118438	-0.29796										
-1	0.594756	-0.3562										
0.222468	0.05708	-0.44014										
0.164204	0.266714	-0.15557										
-0.55492	-0.37292	0.236666										
0.900786	0.073083	-1										
-0.28479	-0.76652	-0.16525										
b(1)			b(2)									
0.379108			-0.32899									
0.971519												
-0.93134												
-0.57285												
0.236435												
0.096667												
-0.90753												
0.553708												
-0.80058												
0.153643												

PACS: 02.70.-c

INFLUENCE OF MECHANICAL MICRO-DEFECTS ON THE LOCAL POLARIZATION IN DEVICES BASED ON FERROELECTRICS

¹A.T. Bogorosh, ¹S.A. Voronov, ²V.F. Mazanko, ²I.O. Shmatko, ²O.A. Shmatko,
³A.G. Shayko-Shaikovsky

¹National Technical University of Ukraine "Kyiv Polytechnic Institute"
e-mail: a.bogorosh@kpi.ua

²Institute of Metal Physics. G.V. Kurdyumov NASU
e-mail: igorshmatko989@gmail.com

³Chernovitsky National University
e-mail: shayko@bk.ru

Received April 23, 2016

The results of theoretical and experimental studies of the effect of the charged micro-defects on a local reversal in the polarized ferroelectric materials. Domain circuit formation given near the surface of charged defects, the surface temperature distribution of the reaction rate and concentration of solute at the surface of the ferroelectric during enteral studies. The changes of amplitude versus frequency wave oscillations and changes in the rate of reaction in the vicinity of the instability microdefect fluctuations, as well as the evolution of the self-oscillation mode, stable and unstable oscillation modes, taking into account features of the fine structure of the hysteresis loop of the local piezoelectric response due to the proximity of the defects. Experimental verification showed that the pulsed electrophysical effects on ferroelectric sample energy is consumed less, but the effect is higher.

KEYWORDS: micro defects, polarization, ferroelectric, piezoelectric, domains

ВЛИЯНИЕ МЕХАНИЧЕСКИХ МИКРОДЕФЕКТОВ НА ЛОКАЛЬНУЮ ПОЛЯРИЗАЦИЮ В ПРИБОРАХ НА ОСНОВЕ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ

¹A.T. Богорош, ¹С.А. Воронов, ²В.Ф. Мазанко, ²И.О. Шматко, ²О.А. Шматко, ³А.Г. Шайко-Шайковський

¹Национальний технічний університет України «Київський політехнічний інститут»

²Інститут металлофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України

³Чернівецький національний університет

Представлены результаты теоретического и экспериментального исследования влияния заряженных микродефектов на локальное реверсирование в поляризованных сегнетоэлектриках. Даны схемы образования домена возле поверхности заряженного дефекта, приповерхностного распределения температуры, скорости реакции и концентрации растворенного вещества на поверхности сегнетоэлектрика в ходе зондового исследования. Выявлены изменения зависимости амплитуды от частоты волновых колебаний и изменение скорости реакции в окрестности микродефекта от неустойчивости колебаний, а также эволюция автоколебательного режима, устойчивого и неустойчивого режимов колебаний с учетом особенности тонкой структуры петель гистерезиса локального пьезоотклика, обусловленных близостью дефектов. Экспериментальная проверка показала, что при импульсном электрофизическом воздействии на образец сегнетоэлектрика энергии потребляется меньше, но эффект оказывается выше.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: микродефекты, поляризация, сегнетоэлектрики, пьезоэффект, домены

ВПЛИВ МЕХАНИЧНИХ МІКРОДЕФЕКТІВ НА ЛОКАЛЬНУ ПОЛЯРИЗАЦІЮ В ПРИБОРАХ НА ОСНОВІ СЕГНЕТОЕЛЕКТРИКІВ

¹О.Т. Богорош, ¹С.О. Воронов, ²В.Ф. Мазанки, ²І.О. Шматко, ²О.А. Шматко,

³О.Г. Шайко-Шайковський

¹Национальний технічний університет України «Київський політехнічний інститут»

²Інститут металлофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України

³Чернівецький національний університет

Представлено результати теоретичного та експериментального дослідження впливу заряджених мікродефектів на локальне реверсування в поляризованих сегнетоелектриках. Дано схеми домену біля поверхні зарядженого дефекту, приповерхневого розподілу температури, швидкості реакції і концентрації розчиненої речовини на поверхні сегнетоелектрика в ході зондового дослідження. Виявлено зміни залежності амплітуди від частоти хвильових коливань і зміна у швидкості реакції навколо мікродефекта від нестійкості коливань, а також еволюцію автоколивального режиму, стійкого і нестійкого режимів коливань з урахуванням особливості тонкої структури петель гистерезиса локального п'єзозвідгуку, обумовлених близькістю дефектів. Експериментальною перевіркою показано, що за імпульсного електрофизичного впливу на зразок сегнетоелектрика енергії споживається менше, але ефект виявляється вищим.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: мікродефекти, поляризація, сегнетоелектрики, п'єзоефект, домени

В приборах на основе сегнетоэлектриков от действия механических и внешних физических факторов появляются микродефекты. В этой связи стоит задача предсказания и выявления микродефектов в сегнетоэлектриках с учетом локальной поляризации доменов.

Целью данной работы является прогнозирование и выявление влияния механических микродефектов на локальную поляризацию в приборах на основе сегнетоэлектрических материалов.

Результатами исследования поставленной задачи и её решение основано на изучении доменов.

Процесс образования домена под действием электрического поля, созданного внешним нано-источником и внутренними микроскопическими дефектами, рассмотрен в рамках термодинамического подхода в работе [1], где избыточная свободная энергия, возникающая при образовании домена, имеет вид:

$$\Phi(r, l, y_0, U) = \Phi_S(r, l) + \Phi_D(r, l) + \Phi_U(r, l, y_0, U) + \Phi_d(r, l, y_0),$$

$$\Phi_U(r, l, y_0, U) = -2P_S \int_V dx E_3^q(\mathbf{x}) \approx -\frac{4\pi U P_S d r^2 l / \gamma}{\left(\sqrt{r^2 + d^2 + y_0^2} + d\right) \left(\sqrt{r^2 + d^2 + y_0^2} + d + l / \gamma\right)},$$

$$\Phi_d = -2P_S \int_V dx E_3^d(\mathbf{x}) \approx -2\pi d^2 h_d P_S E_S \left(1 - \exp\left(-\frac{l}{h_d}\right)\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{r^2}{r_d^2}\right)\right) \exp\left(-\frac{(x_{01} - y_0)^2}{r_d^2}\right).$$

Φ_S – поверхностная энергия доменной стенки, пропорциональна плотности поверхностной энергии ψ_S и площади поверхности домена S ; U – электрическое напряжение, приложенное к источнику, который моделируется эффективным зарядом Q , расположенным на расстоянии d от поверхности сегнетоэлектрика; V – объем домена, r – радиус, l – длина домена, y_0 – положение оси домена относительно начала координат Q' (рис. 1а).

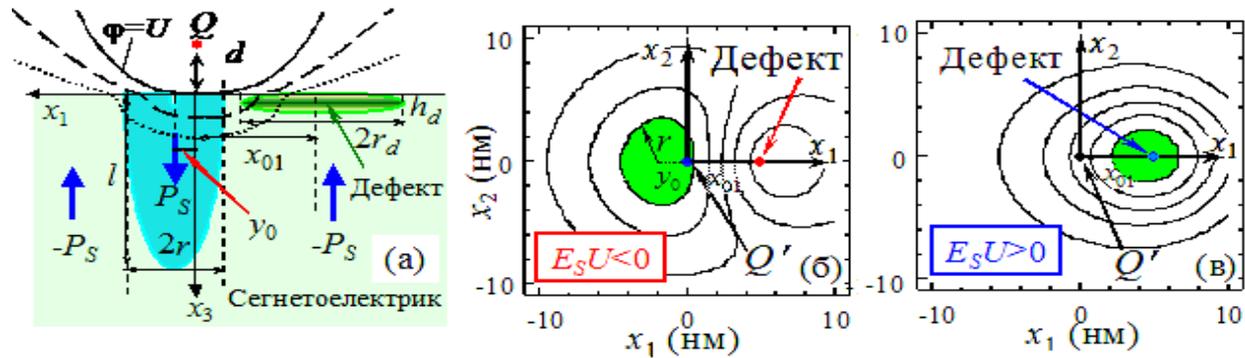


Рис. 1. Схема образования домена возле поверхности заряженного дефекта

Электрическое поле дефекта E_S , которое противодействует (б), или способствует (в) зарождению домена.

Контуры ϕ на рис.1а соответствуют изотермам T_i и концентрациям C_i в сечении, перпендикулярном к поверхности, и вдоль оси зондовой иглки контивелера. Все остальные контуры ответственны эквипотенциальным линиям. Φ_D – энергия поля деполяризации, рассчитанная при условии полного экранирования спонтанной поляризации, когда на поверхности сегнетоэлектрика присутствует экранирующий заряд или отсутствует диэлектрический слой между проводящим источником и поверхностью. Φ_U – энергия взаимодействия домена с внешним электрическим полем $E^q(\mathbf{x})$. Φ_d – энергия взаимодействия домена с электрическим полем дефектов $E^d(\mathbf{x})$. Как правило, поля поверхностных дефектов довольно локализованы [2,3], поэтому поле $E^d(\mathbf{x})$ может быть разложено по гауссовскому базису, а дальнейшее теоретическое рассмотрение сосредотачивается на влиянии поверхностного дефекта, ближайшего к источнику Q , который образует гауссово электрическое поле $E_3^d(\mathbf{x}) \cong E_S \exp\left(-\left(\frac{(x - x_{01})^2 + x_2^2}{r_d^2} - x_3 / h_d\right)\right)$ с характерной шириной распределения r_d и глубиной проникновения $h_d \ll r_d$. Максимум поля дефекта располагается в точке $\mathbf{x}_0 = \{x_{01}, 0, 0\}$ относительно проекции Q' .

Приведенная модель и рис. 1 отражают процесс зарождения домена вблизи дефекта, под действием гауссовского электрического поля. Вместе с тем на зарождение домена вблизи дефекта влияют изменения температуры и концентрации вещества вдоль поверхности, что не учитывается моделью [1]. Поэтому дополнительно рассмотрены пространственные распределения температуры T и концентрации C , изменяющихся со скоростью движения зонда электронного микроскопа u при сканировании поверхности сегнетоэлектрика.

$$u = D(C_l - C_0)/x, \tag{2}$$

где C_l , C_0 - концентрация пересыщения и насыщения среды у поверхности; x - путь диффундирования; D – коэффициент диффузии, который можно определить из уравнения Эйнштейна:

$$D = kT/\eta, \tag{3}$$

здесь η – вязкость среды, k – константа скорости реакции.

Рассмотрим пространственное распределение температуры T и концентрации C вдоль грани кристалла, мигрирующей со скоростью u

Пусть среда имеет температуру

$$T_0 = LC_0/\rho c, \tag{4}$$

где L — тепловой эффект реакции; ρ — плотность среды, c — ее теплоемкость. Грани же кристалла во время экзотермической реакции роста имеет более высокую температуру T_1 .

Если эффективная константа скорости реакции k не зависит от температуры, то понижение концентрации можно записать в виде

$$\frac{dC_0}{dt} = \frac{1}{t} \exp\left[-\frac{E}{RT}\right] \sum_{i=1}^N C_i, \tag{5}$$

где E — энергия активации; R — газовая постоянная; $\sum_{i=1}^N C_i$ — сумма концентраций всех N веществ, участвующих в реакции.

Однако поскольку реакция экзотермическая и теплота выделяется в процессе присоединения молекул, то температура будет повышаться пропорционально скорости падения концентрации:

$$\rho C \frac{dT}{dt} = \frac{1}{t} \exp\left[-\frac{E}{RT}\right] L \sum_{i=1}^N C_i. \tag{6}$$

Поэтому температура повышается пропорционально количеству вещества, осевшего на фронте растущей грани:

$$T = T_0 + L(C_1 - C_0)/\rho c. \tag{7}$$

Тогда приповерхностное распределение температуры приобретает вид зависимостей 1—5, представленных на рис.2.

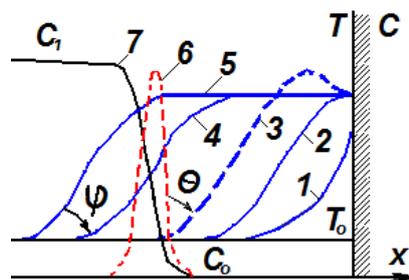


Рис. 2. Приповерхностное распределение температуры (1—5), скорости реакции (6) и концентрации растворенного вещества (7) на поверхности сегнетоэлектрика в ходе зондового исследования.

При этом величина, пропорциональная скорости реакции $|dC/dt|$ (кривая 6), имеет резкий максимум; вначале скорость реакции мала, поскольку температура незначительна, а в конце реакции, по закону Фика — Нернста, она стремится к нулю вследствие падения концентрации (кривая 7).

Таким образом, если температура поверхности T_1 равна T_0 по уравнению (3), то она равна температуре, до которой среда нагрелась бы и сама. Поэтому в начале слой поверхности начинает нагреваться и изотермически нагревает прилегающий слой. Зона подогрева со временем растет (кривые 1 и 2). В нагретом слое начинается реакция, вследствие чего температура может кое-где даже превысить адиабатическую температуру T_1 (кривая 3). Этот скачок температуры (неустойчивость системы) может возникнуть, если слой изменяется, например, аналогично турбулентному вихрю [4, 5] при физическом воздействии на среду потоком электронов).

В дальнейшем с течением времени будут нагреваться слои поверхности, находящиеся на достаточном расстоянии от кончика кантивелера. Распределение температуры вглубь в дальнейшем может соответствовать изотермам кривых 4 и 5, т. е. наблюдаются волновые процессы. Волна возникает у кончика зонда и движется в слой поверхности от фронта изотермы, при этом концентрация теплового потока от домена (кривая 7) и скорость отражения от дефекта (штриховая кривая 6) резко падают непосредственно у фронта двух изотерм. Теплота прореагировавших слоев проникает в холодные области, постепенно затухая. При этом каждый макро объём слоя вначале поглощает энергию от соседних, прореагировавших микро слоёв, а затем отдает такое же количество теплоты более холодному микро слою. Таким образом, волна кристаллизации, зародившись у острия зонда, перемещается самостоятельно в объем сегнетоэлектрика, выделяя $LC_0/\rho c$ энергии при температуре в волне T_1 .

Если выбрать систему координат, связанную с фронтом такой волны, то, с одной стороны, во фронт будет поступать холодный микро слой со скоростью u , с другой стороны — выходить, плотности их принять равными,

то фронт волны будет двигаться также со скоростью u и разность концентраций C в двух соседних сечениях $x + dx$ и x можно описать кинетическим уравнением

$$u[C(x+dx) - C(x)] = -kC. \quad (8)$$

Левая часть уравнения (8) выражает объем сегнетоэлектрика, прореагировавшего в рассматриваемом слое за единицу времени. Предполагая C функцией периода 2π по Θ запишем ее значение в виде

$$C = \sum_{m=-1}^1 \exp[im\theta] f_m(x, \varphi, u, \frac{\partial u}{\partial t}, \frac{\partial u}{\partial x}, \dots), \quad (9)$$

что соответствует описанию концентрации по сечению струи в турбулентном вихре [6]. Здесь $(-I)$ — потеря тепла (охлаждение, вторичная эмиссия электронов), $(+I)$ — подогрев слоя поверхности, f_m — целые рациональные функции своих аргументов, достаточно гладкие, т.е. непрерывно дифференцируемые по x в интервале $(0, L)$.

В математической постановке задачи отыскание неизвестной функции u (что соответствует $\frac{dC}{dt}$) состоит в решении квазилинейной краевой задачи по уравнению для резонансного случая, имеющего вид

$$\frac{\partial^3 u}{\partial t^3} + a \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - b^2 \frac{\partial^3 u}{\partial x^2 \partial t} - ab^2 \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = \in C(\varphi, \Theta, x, x, u, \frac{\partial u}{\partial t}, \frac{\partial u}{\partial x}, \dots) \quad (10)$$

при $\Theta \neq 0$ с линейными однородными краевыми условиями

$$L(u, \frac{\partial u}{\partial x}, \dots)|_{x=C} = 0, C \in (0, L). \quad (11)$$

Допустим, что резонансное соотношение имеет место с учетом атомной шероховатости в виде

$$\Omega_n \equiv b \lambda_n = \rho q^{-1} \gamma + e \sigma, \quad (12)$$

где b, p, λ_n — коэффициенты квантово-механической делокализации точечных дефектов поверхности квантового кристалла, пропорциональности и теплопроводности среды; γ, e, σ — коэффициент кинематической вязкости, параметры амплитуды волны и расстройки частоты [6] в неравновесной системе, т.е.

$$n_j \Omega_j + n_k \Omega_k \neq 0, j \neq k. \quad (13)$$

При $e=0$ краевая задача (10, 11) имеет двухпараметрическое семейство кривых (решений):

$$u_{on}(x, t) = a_n x_n(x) \cos(\Omega_n t + \psi_n), n = 1, 2, \dots, \quad (14)$$

где $\Omega_n = b \lambda_n$; $x_n(x)$ — собственные функции краевой задачи Штурма-Лиувилля,

$$X''(x) + \lambda^2 X(x) = 0, L(X, \frac{dx(x)}{dx}, \dots)|_{x=C} = 0, C \in (0, L) \quad (15)$$

соответствующих собственному значению λ_n , причем функции $x_n(x)$ попарно ортогональны на интервале $(0, L)$; a_n, ψ_n — постоянные.

Применяя асимптотический метод малого параметра, решение квазилинейной краевой задачи (10)-(11) будем искать в виде разложения

$$u(x, t) = a X_n(x) \cos \varphi + e u_1(x, a, \varphi, \Theta) + e^2 u_2(x, a, \varphi, \Theta) + \dots, \quad (16)$$

где $\varphi = \rho q^{-1} \Theta + \psi$; n — номер кривой на рис. 2; $u_j - 2\pi$ — периодические функции скорости по φ и Θ .

Величины a, ψ определяются из системы уравнений

$$\begin{aligned} da/dt &= e A_1(a, \psi) + e^2 A_2(a, \psi) + \dots, \\ d\psi/dt &= e B_1(a, \psi) + e^2 B_2(a, \psi) + \dots \end{aligned} \quad (17)$$

С учетом (11) и (17) подставим (16) в (10) и приравняем коэффициенты при одинаковых степенях e . При этом получим краевую задачу для неизвестной функции u , пригодной для описания атомной шероховатости поверхности сегнетоэлектрика с учетом волновых процессов и резонансных всплесков $|dC/dt|$ (неустойчивости системы), в виде

$$\begin{aligned} [\Omega_n(\partial/\partial\varphi) + \gamma(\partial/\partial\Theta)]^3 u_1 + a [\Omega_n(\partial/\partial\varphi) + \gamma(\partial/\partial\Theta)]^2 u_1 - b^2(\partial/\partial x) [\Omega_n(\partial/\partial\varphi) + \gamma(\partial/\partial\Theta)] u_1 - \\ - ab^2(\partial^2 u_1/\partial x^2) = C_o(x, a, \varphi, \Theta) + 2(\Omega_n A_1 + ab B_1) \Omega_n X_n(x) \cos \varphi + 2(a A_1 - \Omega_n a B_1) \Omega_n X_n \sin \varphi \end{aligned} \quad (18)$$

с краевыми условиями

$$L_c(u_1, (\partial u_1/\partial x), \dots)|_{x=c}=0; \quad C \in (0, L), \tag{19}$$

где $C_o(x, a, \varphi, \Theta) = C(\Theta, x, a, X_n \cos \varphi_1 - \Omega_n a X_n \sin \varphi_1 \dots)$.

Приближенные решения задачи (18) – (19) находим в виде

$$\begin{aligned} u(x, t) &= aX_n(x) \cos \varphi + eu_1(x, a, \varphi, \Theta), \\ u(x, t) &= aX_n(x) \cos \varphi + eu_1(x, a, \varphi, \Theta) + e^2 u_2(x, a, \varphi, \Theta), \\ u(x, t) &= aX_n(x) \cos \varphi + eu_1(x, a, \varphi, \Theta) + e^2 u_2(x, a, \varphi, \Theta) + e^3 u_3(x, a, \varphi, \Theta), \end{aligned} \tag{20}$$

где $\varphi = pq^{-1} \Theta + \psi$;

$$u_{j=0,025} = \frac{\sum_{j=1}^N \sum_{m,s=-1}^I \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^L C_o X_j(x) \exp[-i(m\varphi + s\theta)] dx d\varphi d\theta \exp[i(m\varphi + s\theta)] X_j(x)}{D_j \{i(m\Omega_n + s\gamma)\} \int_0^L X_j^2(x) dx}; \tag{21}$$

$i=1,2,3, \dots; j=1,2,3, \dots$

Величины a и ψ определяются по системе уравнений

$$\begin{aligned} da/dt &= eA_1(a, \psi), \\ d\psi/dt &= e\sigma + eB_1(a, \psi), \end{aligned} \tag{22}$$

где $A_1(a, \psi) = K \sum_r \exp(irq\psi) \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^L C_o X_n(x) (\Omega_n \cos \varphi + a \sin \varphi) [-irq\psi] d\varphi d\theta dx$;

$$B_1(a, \psi) = K \sum_r \exp(irq\psi) \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^L C_o X_n(x) (a \cos \varphi - \Omega_n \sin \varphi) \exp[-irq\psi] d\varphi d\theta dx$$
;

здесь $K = - [0,025 a \Omega_n (a^2 + \Omega_n^2) \int_0^L X_n^2 dx]^{-1}$.

Если продольное колебание локальной субмикрповерхности сегнетоэлектрика с учетом физико-химических свойств среды представить в виде соотношения (20) и допустить, что имеет место соотношение (12), то асимптотическое решение можно получить в виде

$$u(x, t) = a \sin \lambda_1 x \cos(\Theta + \varphi). \tag{23}$$

Здесь a и ψ определяются из системы уравнений

$$\begin{aligned} da/dt_1 &= -\beta^* ab - E^* \cos \psi; \\ d\psi/dt &= 1 - \eta^* + \Omega_1 \beta^* - b^* a^2 + (E^*/a) \sin \psi; \end{aligned} \tag{24}$$

где $t_1 = \Omega_1 t$; $\beta^* = e\beta \lambda_1^2 / 2 \Omega_1 (a^2 + \Omega_1^2)$; $E^* = eEc^* h_1 / 2 \Omega_1^2$; $\eta^* = \gamma \Omega_1$; $h_1 = h\Phi$;

$b^* = 3e(1+Q) b_1^2 \lambda_1^4 / 32 \Omega_1^2$; $Q = -4 \lambda_1^2 h_1 / \{(h_1^2 + \lambda_1^2)[(h_1^2 + \lambda_1^2)L] + h_1\}$;

$c^* = 2(1 - \cos \lambda_1 L) (h_1^2 + \lambda_1^2) / \lambda_1 [L(h_1^2 + \lambda_1^2) + h_1]$,

h – постоянная Планка; h_1 – расстояние между «нулевыми» поверхностными дефектами на поверхности квантового кристалла, зависящее от фактора неустойчивости Φ [7]. При этом частота волновых колебаний η связана с амплитудой a зависимостью

$$\eta = 1 + \Omega_1 \beta^* - b^* a^2 \pm E^* [a^2 - (\beta^* a E^{-1})^2]^{1/2}. \tag{25}$$

Зависимость (25) указывает на изменения скорости реакции $u | dC/dt |$ с учетом кристаллизационных волн на квантово-шероховатых поверхностях, вызванных Φ , соизмеримым со значением потока энергии с единицей измерения Дж с в противоположность безразмерной величине Φ .

Численное решение (25) с учетом параметров, приведенных в (9) – (24), в том числе: f_m – объемной плотности энергии физического воздействия в среде, равной разности между объемными плотностями энергии среды в возмущенном и невозмущенном состояниях, описываемой целыми рациональными функциями своих аргументов, достаточно гладких в интервале $(0, L)$; b - коэффициента пропорциональности кинетической и потенциальной энергии деформируемой среды от Φ и i - коэффициента конверсии, равного отношению вероятностей действия Φ при испускании и поглощении кванта энергии новой волной за промежуток времени τ ; l – длины фронта волны; $p = l/N_A$; где N_A - число Авогадро; q - величины тангенциального смещения гребня

волны от оси резонансной кривой, характерной для вещества с валентностью m ; r – массового количества дефектов при критической концентрации доменов S и различных числах Шервуда Sh ; a – коэффициента квантово-механической делокализации точечных дефектов; e – параметров амплитуды; Θ – угла рассогласования скорости реакции и падения концентрации; Ω – перестройки параметра атомной шероховатости квантового кристалла; σ – параметра расстройки частоты от Φ ; $\bar{\varphi}$ и φ – мгновенного и устойчивого значений углов атаки фронта тепловой волны, а также угла наклона турбулентного вихря к продольной оси волны ψ .

Так, при $E^* = 0,1$; $b^*_1 = 0,5$; $a = \Omega = 1$ и механическом перемещении зонда, вибрации (пульсациях) и др., $\beta^* = 0,15$ резонансная кривая имеет явно выраженный максимум, отклоненный в сторону C_1 (рис. 3, кривая 2).

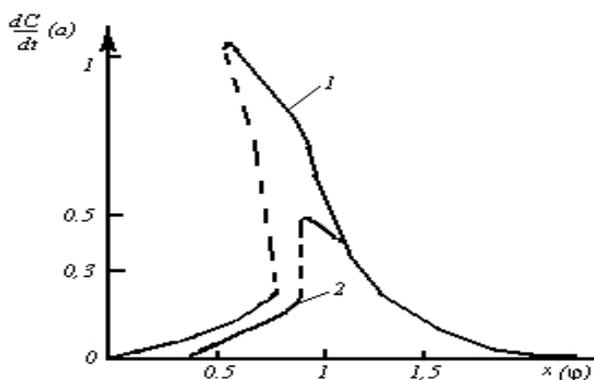


Рис. 3. Зависимость амплитуды a от частоты волновых колебаний η или изменение скорости реакции $|dC/dt|$ в окрестности x от неустойчивости колебаний с амплитудой 1,1 (1) и 0,4 (2).

Экспериментальная проверка показала, что при импульсном электрофизическом воздействии на образец сегнетоэлектрика энергии потребляется меньше, но эффект оказывается выше. Например, при импульсном воздействии ультразвуком частотой 22,4 кГц и интенсивностью на магнитоэлектрике 1,86 Вт/см² через 0,01с и 0,05 - 1с аperiodически $\beta^* = 0,1$, что соответствует кривой 1 на рис.3 (сплошные участки кривых соответствуют устойчивым, а штриховые — неустойчивым квазистационарным колебаниям), что подробно рассмотрено в работах [6, 10].

Приведенные результаты свидетельствуют о возможности управлять процессом образования доменов в сегнетоэлектриках внешними физическими воздействиями. Решение задачи свидетельствует также о связи распределения концентраций и температуры в прилежащем изотермическом микрообъеме и перемещения фронта волны T или C с волновыми колебаниями частотой η и амплитудой a . Эти колебания можно инициировать различными физическими воздействиями, а следовательно, управлять (интенсифицировать или подавлять) процессами образования дефектов, что и подтверждено многочисленными экспериментами [6,7].

Предлагаемая теория приповерхностного волнового распределения T и C подтверждает зависимость скорости реакции в гетерогенных системах от неустойчивости кристаллизации, что ранее не учитывалось при изучении кинетики роста дефектов в сегнетоэлектриках. Именно этим можно объяснить, почему на кривой скорости реакции (рис. 3) существует острый пик, совпадающий с пиком тепловыделения (штриховая линия б на рис. 2), отклоняющийся в сторону максимальной концентрации дефектов.

В химической кинетике обычно не стремятся к высокой количественной точности в силу сложности элементарных атомно-молекулярных процессов, вызывающих реакцию, и кинетические константы обычно известны с меньшей точностью, чем полученные решением уравнений (5 - 10). Это обстоятельство позволит в дальнейшем решить задачи устойчивости и автоколебаний в гетерогенных системах при зародышеобразовании и росте дефекта или домена у поверхности сегнетоэлектрика, а также задачу перемещения теплового изотермического фронта с захватом дефектов и примесных кластеров на уровне квантового аналога классического атомно-шероховатого состояния.

Анализ математической модели полностью подтверждает эти соображения. Как и для случая обычных механических колебаний, кривые имеют резонансный характер (рис. 2, кривая б) с максимумом при частоте, близкой к частоте собственных колебаний системы. Ширина резонансной кривой и величина максимума связаны с наличием затухания свободных колебаний системы: чем больше затухание, тем слабее выражен резонанс и тем шире резонансная кривая.

Затухание колебаний какой-либо системы обычно характеризуется величиной, называемой декрементом затухания, который, как и собственная частота, является внутренней характеристикой энергии системы, например, с ее диссипацией вследствие трения. Обычно декремент затухания определяется производными скорости процесса и температуры зоны реакции по начальной температуре.

Учет неустойчивости системы приводит к появлению интересных физических явлений, возбуждаемых и гасимых внешними физическими воздействиями, например, турбулентных вихрей, предсказанных в работах [6,7].

При этом от амплитуды колебаний концентрации или температуры выявляется зависимость не только собственной частоты системы, что хорошо известно из теории нелинейных колебаний квантовомеханических систем с сосредоточенными параметрами, но и декремента затухания самой системы. Все это приводит к вынужденным колебаниям скорости, в частности, к возможности появления автоколебательного режима.

В зависимости от природы сегнетоэлектрика декремент затухания может либо возрастать с увеличением, амплитуды колебаний, либо уменьшаться, что ближе к нашему случаю и требует более подробного рассмотрения.

Пусть сила внешнего физического воздействия имеет частоту, близкую к собственной частоте колебаний системы, т. е. осуществляется резонансный режим. При достаточно большой величине амплитуды внешнего физического воздействия резонансная кривая изогнется, например, влево (рис.3), чем и будет отличаться от обычного линейного резонанса. Характерной чертой этой кривой является неоднозначность зависимости амплитуды скорости процесса от частоты: при некоторых частотах имеем только один режим, при других - несколько. Так, численное решение задачи показывает, что, если плавно уменьшать амплитуду внешних колебаний, резонансная кривая *l* (рис. 4 а) сжимается неравномерно.

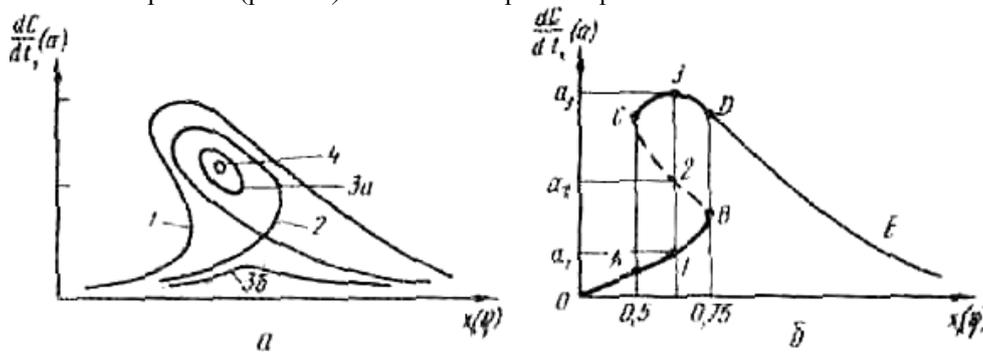


Рис. 4. Эволюция кривой автоколебательного режима (а), устойчивого и неустойчивого режимов колебаний (б).

Средняя ее часть становится настолько тонкой, что резонансная кривая само пересекается (кривая 2), образуя петлю в виде турбулентного вихря. Подобие таких вихрей, соответствующих повышению концентрации потока электронов в момент зарождения домена или дефекта, подобно кинетике, описанной в [6-9].

При уменьшении амплитуды внешнего физического воздействия кривая отклика скорости процесса на колебания неустойчивости разделяется на две ветви (кривые 3а и 3б). Эти изотермы здесь опущены в условиях турбулентных пульсаций под воздействием ультразвука [6, 10]. Одна из них (3а) имеет вид замкнутого неправильного круга, оторванного от кривой 3б обычного линейного резонанса, вытягивающейся и приближающейся к оси η или x. При дальнейшем уменьшении амплитуды внешних воздействий и сведении их к нулю кривая 3б сливается с абсциссой, а круг сжимается в точку 4. Это и есть режим автоколебаний, обладающий для конкретного сегнетоэлектрика определенной амплитудой (ордината выявленной точки 4) и частотой (абсцисса точки 4).

Возможность колебаний с конечной амплитудой при отсутствии внешних физических воздействий объясняется тем, что декремент затуханий падает с ростом амплитуды. Так, в выявленной точке 4 амплитуда колебаний скорости процесса такова, что декремент затухания равен нулю, а колебания с нулевым декрементом не должны затухать. Следовательно, в выявленной точке 4 образуется дополнительный термодинамически устойчивый домен. Для возбуждения такого автоколебательного режима достаточно наложить на систему возмущение в виде внешнего физического воздействия в виде фактора неустойчивости Φ [6]:

$$\Phi = 1 + \eta \sum_{j=1}^{\infty} \frac{u(y, \tau)}{u(x, y)} - u(y) + C(y), \tag{26}$$

Рассекая прямыми, параллельными оси ординат, кривую 1 по абсциссе от 0,5 до 0,75 (рис. 3 б), можно обнаружить три различные амплитуды вынужденных колебаний. Согласно теории нелинейных колебаний, из трех возможных режимов (a₁, a₂ и a₃) устойчивы те, у которых амплитуда колебаний наибольшая или наименьшая. Это отвечает точкам 1 и 3. Следовательно, участок кривой BC соответствует неустойчивым режимам, вызванным действием фактора неустойчивости в локальной области. Таким образом, в некоторой локальной области частот должны быть колебания с различными амплитудами (участки AB и CD). Оба эти режима должны иметь место при зондовом исследовании локальной точки сегнетоэлектрика, вызывая локальный приток или отток электронов.

Так, например, при повышении частоты внешнего физического воздействия от 0 до A и далее можно получить ветвь резонансной кривой OAB . Затем в точке B амплитуда колебаний скачкообразно возрастает до значения в точке D . Участок резонансной кривой CD может быть получен при плавном повышении или понижении частоты фактора неустойчивости, т. е. при движении от точки C происходит срыв амплитуды колебаний к значению, соответствующему точке A .

При рассмотрении одномерного случая все возмущения зависят от одной координаты x . Соответственно этому, поверхность кристалла или зона химической реакции остаются плоскими. Неустойчивость послыонного перемещения изотермического фронта, приводящая к автоколебательному режиму, наступает при зависимости скорости реакции от температуры. Количественно это выражается в критическом значении константы реакции. Возникновение автоколебаний – своего рода защитная реакция процесса затухания. Если невозможен стационарный режим, то наступает депрессия, когда имеет место период накопления энергии (нагревание или охлаждение значительного микрообъема вокруг растущего домена перед решающим захватом близко расположенных кластеров и термодинамически устойчивых вновь сформировавшихся центров образования доменов). Эти этапы экспериментально обнаружены при скоростной киносъемке под микроскопом по методу, описанному в работе [10].

Иногда предел устойчивости процесса возникает одновременно с искажением формы фронта изотермы. При этом точное решение задачи приводит к простому критерию фактора устойчивости в виде

$$\Phi \equiv [(T_1 - T_0)/u(T_0)] du/dT_1 = (T_1 - T_0)E/2RT_1^2, \quad (27)$$

где T_0 , T_1 — начальная и текущая температура; u - скорость реакции; E - энергия активации роста дефекта (в пределах $E \approx (5,9 \dots 48,2) \cdot 10^3$ Дж/моль при $D_0 \approx 80 - 100\%$ и $30-80$ °C по данным Ван-Гоука, М.С. Жигалова и И.С. Гулого), или неустойчивости, физический смысл которого рассмотрен в [6].

Если $\Phi_0 > \Phi$, то режим устойчив, а при $\Phi_0 < \Phi$ реакция носит автоколебательный характер. При небольшом превышении критической величины $\Phi_0 \approx 4,37$ скорость процесса имеет слабые и почти синусоидальные колебания. Увеличение Φ ведет к росту амплитуды колебаний и деформации формы кривой. При этом переход через предельное значение Φ_1 , которое значительно отличается от Φ_0 , соответствующего потере устойчивости плоского фронта, сопровождается превращением плоского фронта в двух- или трехмерную структуру, т. е. охватывает весь домен.

При решении этой задачи численным методом оказывается, что наиболее простая форма такой структуры – гофрированная поверхность, когда некоторые участки фронта фазового перехода обгоняют соседние с периодически расположенными в пространстве участками. Следовательно, при потере устойчивости наиболее неустойчивой формой является гармоника с определенной длиной волны (рассматривается неустойчивость плоского фронта, соответствующего длине волны $\lambda \leq \infty$).

При потере устойчивости и переходе Φ в Φ фронт кристаллизации приобретает форму гармоники с длиной полу волны, равной отрезку $\lambda/2$ (кривая BC на рис. 4 б).

Исследования показали, что картина фронта химической реакции изменяется во времени. Фронт представляет собой ячеистую структуру, в которой периодически расположены квантовые возвышения и впадины, причем последние могут перемещаться по поверхности фронта. На возвышениях наблюдаются более высокие значения температуры и концентрации для веществ прямой растворимости (и наоборот, для веществ обратной растворимости), а следовательно, и большая скорость реакции. Однако эти возвышения не обгоняют впадины (квантовые ямы в гетеро структурах), поскольку между всеми элементами фронта при неплоском его структуре существует тепло- и массообмен, который и обуславливает движение фронта как целого вдоль своей оси. Если реакция во впадинах затухает, фронт изотермы может распасться на ряд не связанных между собой ячеек, имеющих определенные размеры и довольно сложную слоисто-вихревую или скаленоэдрическую структуру. Микрофотографии таких поверхностей приведены, например, в работах [6-9]. Кроме того, в этих впадинах происходит скопление и захват примесных кластеров, которые меняют свойства веществ.

Численные расчеты, проведенные для типовых параметров дефекта $r_d \sim (5-50)$ нм, $h_d \sim (1-2)$ нм и $E_S = (10^8-10^9)$ В/м, показали, что склонность к сдвигу домена как целого на расстояние y_0 под действием электрического поля к дефекту оправдано.

В частности, на рис. 1 б-в показано, что зарождение домена вблизи заряженного дефекта создает гауссовской электрическое поле $E^d(\mathbf{x})$ и происходит внутри затемненной области, где суммарное электрическое поле аксиально-симметричного источника Q и дефекта максимальное. Поскольку форма эквипотенциальных линий на поверхности образца в этой области близка к аксиально-симметричной, то и форма зародыша домена близка к аксиально-симметричной, но его центр будет сдвинут на расстояние y_0 по проекции Q' .

Для расчетов энергии домена справедливые приближенные равенства в выражении (1), которые позволяют проводить аналитические расчеты размеров полу-эллипсоидного домена с размерами r , l и его положения y_0 из минимума свободной энергии (1). Рельеф свободной энергии домена, образуется вблизи поверхностного дефекта гауссовского типа и существенно зависит от расстояния x_{01} между проекцией эффективного заряда Q' и дефектом.

Подтверждены эффекты отталкивания и притяжения зародыша домена дефектами с различными направлениями электрического поля. Так, поверхностные дефекты, локализованные на расстояниях $|x_0| \leq r_d$ от проекции источника Q'' , электрическое поле которых антиколлинеарно поляризации домена и достаточно высоко по абсолютной величине, затрудняют зарождения домена, так что критический зародыш отталкивается от дефекта. «Позитивный» дефект, электрическое поле которого коллинеарно поляризации домена, действует как центр зародышеобразования сам по себе: если величина поля дефекта превышает критическое значение $E_S^{cr} \sim \left((\psi_S/h_d P_S) + (P_S/\varepsilon_0 \varepsilon_{11}) \right)$, тогда возникает поверхностный домен с длиной $l \cong h_d$, радиусом $r \leq r_d$ и центром в точке x_0 . Позитивный дефект, локализованный на расстоянии $|x_0| \leq r_d$, играет роль катализатора зародышеобразования дефекта. Если электрическое поле дефекта достаточно большое ($E_S > E_S^{cr}$), зародыш критического размера будет находиться вблизи дефекта $y_0 \approx x_{01}$. При повышении напряжения (не только электромагнитного или механического) размеры зародыша дефекта уменьшаются и его положение смещается в сторону источника внешнего физического (электромагнитного и механического) поля. В результате равновесное положение стабильного домена (образования дефекта) приближается к $y_0 = 0$. Без учета пиннинга кристаллической решетки, домен возникает вблизи ближайшего «позитивного» дефекта, который быстро увеличивается в размерах с ростом U , и движется как целое по направлению к источнику. Если доменная стенка пиннингуются решеткой, то домен как целое не движется, а увеличивается с ростом электрического напряжения и может приобрести асимметричную форму.

Результаты исследования влияния параметров дефекта при критическом напряжении (размеров домена и высоты активационного барьера E_a) разделяют состояние сегнетоэлектрика с однородной поляризацией и состояние, активизирующее дефектообразование при повышении температуры T и концентрации среды k_B , где установлены приборы на основе сегнетоэлектрических материалов. Выведены приближенные аналитические зависимости высоты активационного барьера E_a , положение y_0 и размеров зародыша l_S и r_S от электрического напряжения и характеристик дефекта:

$$E_a(U) \approx \frac{2\pi\psi_S^3}{3} \left(\frac{3P_S d \cdot U}{\gamma(\sqrt{d^2 + y_0^2} + d)^2} - \frac{P_S^2}{3\varepsilon_0 \varepsilon_{11}} + \frac{3}{2} P_S E_S^* \exp\left(-\frac{(x_{01} - y_0)^2}{r_d^2}\right) \right)^{-2}, \quad (28)$$

$$y_0(U) \approx \frac{x_{01} E_S \exp(-x_{01}^2/r_d^2)}{E_S \exp(-x_{01}^2/r_d^2) + U r_d^2 (d + h_d) / 2d^3 h_d}, \quad l_S(U) \sim r_S(U) \cong \sqrt{\frac{3E_a(U)}{2\pi\psi_S}}.$$

Амплитуда $E_S^*(h_d) = E_S \exp(-9\varepsilon_0 \psi_S / 8h_d P_S^2)$. Активационные напряжения определяются из равенства высоты барьера (28) определенному уровню, например, $E_a = 2-20 k_B T$. Типичные зависимости высоты активационного барьера от электрического напряжения U , активационной напряжения U_a от расстояния x_{01} к дефекту приведены на рис. 5а-б. Активационное напряжение, соответствующее зарождению домена при отсутствии дефекта или вблизи дефекта при разных направлениях спонтанной поляризации $\pm P_S$, обозначены U_a^0 и U_a^\pm соответственно. Реверсирования поляризации поверхностного домена происходит скачком при напряжении $U_S^+ \sim \gamma d E_S^{cr}$.

Особенности тонкой структуры петель гистерезиса локального пьезоотклика, обусловленные близостью дефектов, рассмотрены в работе [11]. Влияние дефектов обуславливает не монотонность в виде прыжков, максимумов, минимумов пьезооткликов и горизонтальную асимметрию петель гистерезиса по напряжению U , как показано на рис. 5в,д.

В результате рассмотренных исследований поставленной задачи выявлена необходимость учитывать неустойчивость системы, которая приводит к появлению физических свойств, возбуждаемых и гасимых внешними физическими воздействиями, включая турбулентные вихри тепловых и концентрационных пульсаций сред, рассмотренных в работах [6,7]. Вследствие изменений амплитуды колебаний концентрации или температуры рабочей среды прибора на основе сегнетоэлектрика возникают вынужденные колебания в системе и, в результате устанавливается автоколебательный режим. В зависимости же от природы сегнетоэлектрика декремент затухания может либо возрастать с увеличением, амплитуды колебаний, либо уменьшаться, что ближе к рассмотренному нами случаю.

С учетом колебаний температуры и концентрации решена задача предсказания и выявления механических микродефектов в приборах на основе сегнетоэлектрических материалов с локальной поляризацией доменов в связи с чем можно отметить аналогию с выводами, приведенными в работе [1].

Установлено, что комплексное рассмотрение термодинамической теории образования нано и микро доменов в сегнетоэлектрических материалах и аналитической теории их локального пьезоэлектрического отклика на возбуждение внешним электрическим полем открывает возможности самосогласованного количественного анализа экспериментальных данных.

Таким образом, развита термодинамическая теория локального реверсирования поляризации в сегнетоэлектриках вблизи заряженных дефектов. Установлено, что поверхностные дефекты имеют формы

петель локального пьезоэлектрического гистерезиса, как прыжки пьезоотклика и асимметрия коэрцитивных напряжений. Полученные аналитические зависимости энергии активации образования зародыша, его размеров и радиуса устойчивого домена от конфигурации электрических и тепловых полей внутренних дефектов и внешнего нано размерного источника позволяют определить размеры нано доменов, образующихся вблизи дефектов путем деконволюции экспериментальных петель гистерезиса локального пьезоэлектрического отклика.

Разработано использование связанных уравнений для аналитического описания реверсирования поляризации в пространственно неоднородных сегнетоэлектриках-полупроводниках с заряженными дефектами или неизоэлектронными примесями.

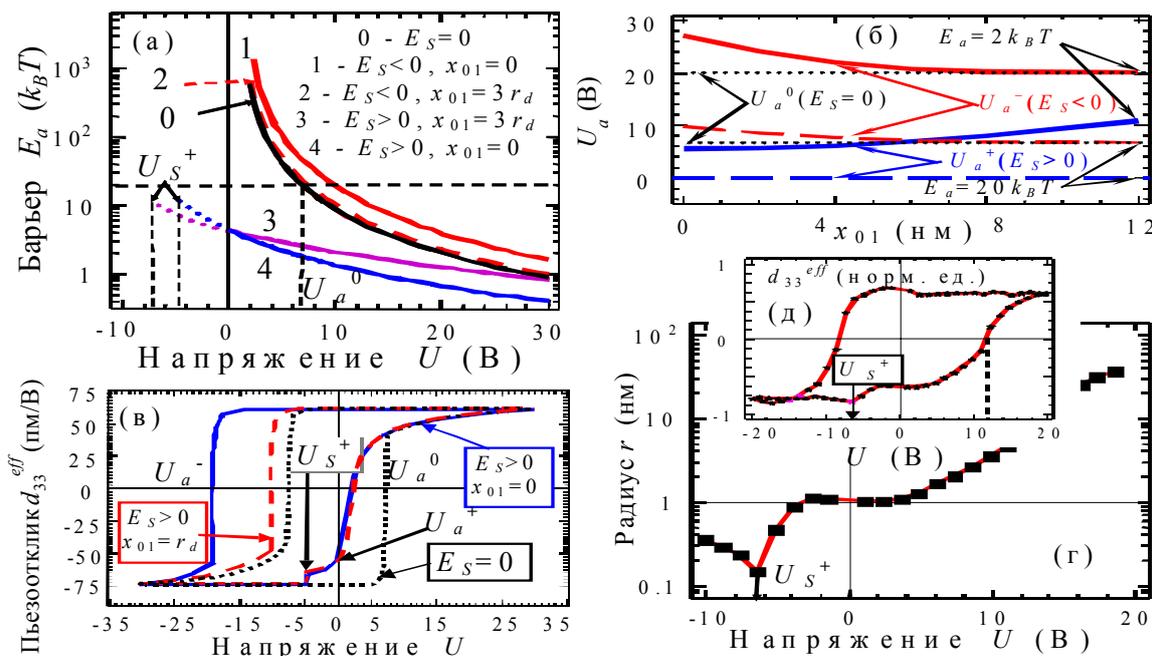


Рис. 5. Особенности тонкой структуры петель гистерезиса локального пьезоотклика, обусловленные близостью дефектов, изменения температуры и концентрации среды в местах расположения приборов на основе сегнетоэлектрических материалов

- (а) – зависимость активационного барьера (в единицах $k_B T$) от приложенного напряжения U для различных значений расстояния x_{01} в дефекте создается гауссовское электрическое поле с радиусом $r_d = 4$ нм, глубиной проникновения $h_d = 0.8$ нм и амплитудой E_S в сегнетоэлектриках PZT-6В, (кривая 0), -10^9 В / м (кривые 1, 2), $+10^9$ В / м (кривые 3, 4).
- (б) – зависимость активационной напряжения U_a от x_{01} для $E_a = 2 k_B T$ и $20 k_B T$.
- (в) – петли гистерезиса пьезоотклика домена, рассчитанные по (5) и (15) с учетом пиннинга. Пунктирная ($E_S = 0$), штрихованных ($x_{01} = r_d, E_S \neq 0$) и сплошная ($x_{01} = 0, E_S \neq 0$); кривые рассчитаны для $E_a = 20 k_B T$.
- (г) – зависимость радиуса домена от напряжения, полученная методом деконволюции по (5) из петли гистерезиса ПСМ отклика;
- (д) – для пленки BiFeO_3 толщиной 200 нм [1].

Показано, что сочетание термодинамической теории образования нанодоменов – предвестников дефектов в сегнетоэлектрических материалах и аналитической теории их локального пьезоэлектрического отклика на возбуждение внешним электрическим полем открывает возможности прогнозируемого самосогласованного количественного анализа экспериментальных данных.

Результаты численного моделирования и аналитические выражения для зависимости пьезоотклика и размеров доменов от внешнего электрического поля и параметров сегнетоэлектрического материала хорошо согласуются как с экспериментальными зависимостями для тонких пленок и монокристаллов типичных сегнетоэлектриков, так и с многочисленными результатами, полученными независимо методом моделирования фазовых полей другими авторами, обеспечивает достоверность полученных результатов.

Полученные результаты открывают возможности моделирования петель гистерезиса локального пьезоэлектрического отклика и самосогласованного количественного анализа экспериментальных данных пьезоэлектрической силовой микроскопии, петель сегнетоэлектрического, диэлектрического и пьезоэлектрического гистерезиса в полярно-активных кристаллических и керамических материалах, что имеет практическое значение для миниатюризации приборов нанoeлектроники на основе сегнетоэлектрических материалов.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРЫ

1. Morozovska A.N., Svechnikov S.V., Eliseev E.A., Rodriguez B.J., Jesse S., Kalinin S.V. Local Polarization Switching in the Presence of Surface Charged Defects: Microscopic Mechanisms and Piezoresponse Force Spectroscopy Observations // *Phys. Rev. B.* – 2008. – Vol. 78. – No. 5. – P.054101-1-17.
2. Kalinin S.V., Jesse S., Rodriguez B.J., Chu Y.H., Ramesh R., Eliseev E.A., Morozovska A.N. Probing the role of single defects on thermodynamics of electric-field induced phase transitions // *Phys. Rev. Lett.* – 2008. – Vol. 100. – No. 15. – P.155703-1-4.
3. Jesse S., Rodriguez B.J., Choudhury S., Baddorf A.P., Vrejoiu I., Hesse D., Alexe M., Eliseev E.A., Morozovska A.N., Zhang J., Chen L.-Q., Kalinin S.V. Direct Imaging of the Spatial and Energy Distribution of Nucleation Centers in Ferroelectric Materials // *Nature Materials.* – 2008. – Vol. 7. – No. 3. – P. 209-215.
4. Bogorosh A.T., Belov N.V., Fedotkin I.M., Gulyj I.S., Sandomirskij P.A., Simonov M.A. Upravljaemyj sintez igol'chatyh kristallov // *DAN SSSR.* – 1976. – T.224. – No. 3. – S. 928-931.
5. Bogorosh A.T. The Effect of Elastik Vibrations on Monodispersity and Kinetics Crystallization // *The Allerton Press Ins.: J.Program*, 1983, 150, Ins., 150; Fifth Avenue, N.Y., 10011, P.49-52.
6. Bogorosh A.T. Vozmozhnosti upravlenija svojstvami kristallicheskih otlozhenij i ih prognozirovanie. - K.: Vishha shkola, 1987. - 247s.
7. Bogorosh A.T. Formirovanie pripoverhnostnogo sloja rastushhego monokristalla pri ionnoj implantacii primesej // *DNANU.* – 1999. – No.2. – C.80-91.
8. Bogorosh A.T. Kristallizacionnye volny pri zarozhdenii i roste monokristallov // *Dopovidi NANU.* – 1999. – No.12. – S.82-90.
9. Bogorosh O.T. Fyzyko-himichna informatyka: narodzhennja novogo naukovogo naprjamu // *Visnyk NAN Ukrainy.* – 1999. – No.10. – S.15-19.
10. Bogorosh A.T. Vlijanie uprugih kolebanij na monodispersnost' i kinetiku kristallizacii $C_{12}H_{22}O_{11}$, $CaCO_3$ -A, $CaCO_3$ -K // *UHZh.* – 1981. – T.47. – No.4. – S.384-388.
11. Bogorosh A., Voronov S., Višniakov N., Novickij J. Diagnostics of mechanical defects in navigation electronic devices // *Materials science.* – 2006. – Vol.12. – No.4. – P.30-39.

PACS: 02.70.-c

INFLUENCE OF THE ADDITIVES OF THE THIRD ELEMENT IN ALLOY Cu-Ti ON ENERGY OF THE SEGREGATION OF THE IMPURITY DURING CELLULAR PRECIPITATION OF THE SOLID SOLUTION

S.I. Derevianko¹, A.K. Kuzniak², Ju.A. Liashenko¹, I.O. Shmatko², O.A. Shmatko²

¹*Cherkassy National University Bohdan Chmelnytsky
Shevchenko blvd. 79, Cherkasy, 18000, Ukraine
e-mail: urico@ukr.net*

²*Institute of Metal Physics. G.V. Kurdyumova NAS
Acad. Vernadsky blvd. 36, Kiev, 03680, Ukraine
e-mail: igorshmatko989@gmail.com*

Received April 23, 2016

The mathematical analysis of influence of additives of the third component (Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Ga, Zr, In, Sn) on quantities of energies of a segregation of impurities in volume and on boundaries of grains of alloy Cu-4,35 at. % Ti is made during aging on the cellular mechanism. Calculation of enthalpies of a segregation is spent with the account of energies of interatomic and elastic interaction of atoms of a different grade. Effects of experimental researches testify, in particular, to effective accelerating influence Ni on development of cellular decay in alloy Cu-4,35 at. % Ti and essential inhibiting action of the given process by an additive Co. On the basis of modelling calculations of enthalpies of mixture in volume and on boundaries of grains it is erected that for the specified additives distinctions in quantities of an enthalpy of mixture in volume of grains appear considerable. The carried out analysis can be taken as a principle build-ups of model of a dynamic segregation and its influence on velocity of cellular decay in threefold metal systems.

KEYWORDS: segregation, surface energy, grain boundary migration, diffusion, cellular precipitation.

ВПЛИВ ДОДАНКІВ ТРЕТЬОГО ЕЛЕМЕНТУ ДО СПЛАВУ Cu-Ti НА ЕНЕРГІЮ СЕГРЕГАЦІЇ ДОМІШКИ ПІД ЧАС КОМІРЧАСТОГО РОЗПАДУ ТВЕРДОГО РОЗЧИНУ

С.І. Дерев'янкo¹, А.К. Кузняк², Ю.А. Ляшенко¹, І.О. Шматко², О.А. Шматко²

¹*Черкаський національний університет ім. Богдана Хмельницького
Україна, 18000, Черкаси, бульвар Шевченка, 79.*

²*Інститут металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України
Україна, 03680, Київ, бульвар Академіка Вернадського, 36.*

Виконано математичний аналіз впливу доданків третього компонента (Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Ga, Zr, In, Sn) на величини енергій сегрегації домішок в об'ємі і на межах зерен сплаву Cu-4,35 ат. % Ti в ході старіння за комірковим механізмом. За розрахунку ентальпій сегрегації взято до уваги значення енергій міжатомної і пружної взаємодії атомів різного сорту. Результати експериментальних досліджень, зокрема, свідчать про ефективне комірчастого розпаду в сплаві Cu-4,35 ат. % Ti під впливом доданку Ni, а також про істотне гальмування цього процесу добавкою Co. На підставі модельних розрахунків ентальпій змішування в об'ємі і на межах зерен встановлено, що для зазначених доданків значними виявляються відмінності в величинах ентальпій змішування в об'ємі зерен. Проведений аналіз може бути покладено в основу побудови моделі динамічної сегрегації та її впливу на швидкість комірчастого розпаду в потрійних металевих системах.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: сегрегація, поверхнева енергія, міграція меж зерен, дифузія, комірчастий розпад

ВЛИЯНИЕ ДОБАВОК ТРЕТЬЕГО ЭЛЕМЕНТА В СПЛАВ Cu-Ti НА ЭНЕРГИЮ СЕГРЕГАЦИИ ПРИМЕСИ В ХОДЕ ЯЧЕЙСТОГО РАСПАДА ТВЕРДОГО РАСТВОРА

С.И. Дерев'янкo¹, А.К. Кузняк², Ю.А. Ляшенко¹, И.О. Шматко², О.А. Шматко²

¹*Черкасский национальный университет им. Богдана Хмельницкого
Украина, 18000, Черкасы, бульвар Шевченко, 79.*

²*Институт металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины
Украина, 03680, Киев, бульвар Академика Вернадского, 36.*

Выполнен математический анализ влияния добавок третьего компонента (Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Ga, Zr, In, Sn) на величины энергий сегрегации примесей в объёме и на границах зёрен сплава Cu-4,35 ат. % Ti в ходе старения по ячеистому механизму. Расчёт энтальпий сегрегации проведен с учётом энергий межатомного и упругого взаимодействия атомов разного сорта. Результаты экспериментальных исследований свидетельствуют, в частности, об эффективном ускоряющем влиянии Ni на развитие ячеистого распада в сплаве Cu-4,35 ат. % Ti и существенном торможении данного процесса добавкой Co. На основании модельных расчётов энтальпий смешения в объёме и на границах зёрен установлено, что для указанных добавок значительными оказываются различия в величинах энтальпии смешения в объёме зерен. Проведенный анализ может быть положен в основу построения модели динамической сегрегации и ее влияния на скорость ячеистого распада в тройных металлических системах.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: сегрегация, поверхностная энергия, миграция границ зерен, диффузия, ячеистый распад

Одним из кардинальных вопросов в исследовании кинетики фазово-структурных превращений в ходе таких процессов как рекристаллизация, рост зёрен, ячеистый распад пересыщенных твёрдых растворов [1,2],

кинетической и термодинамической стабилизации нанокристаллических плёнок под влиянием примесных сегрегаций на межфазных границах [3-5] является анализ влияния добавок третьего элемента на подвижность границ зёрен в сплавах. Собственно сегрегация атомов на межзёренных и межфазных границах есть одним из важнейших факторов, влияющих на термодинамическую и эксплуатационную стабильность поликристаллических структур. Следует иметь в виду существенное различие равновесных и неравновесных сегрегаций. Равновесные сегрегации, образующиеся на неподвижных границах, описываются с помощью термодинамических принципов равновесия подсистем [5-9]. Иначе описываются процессы динамических сегрегаций, протекающих на поверхности раздела фаз, мигрирующей с определённой скоростью [10-15]. В случае, когда поверхность раздела фаз перемещается с относительно низкой скоростью, проявляется возможность формирования в ней равновесной сегрегации компонентов. Особый интерес представляет исследование образования сегрегаций на подвижных высокоугловых границах зёрен и, в частности, их влияния на скорость ячеистого распада твёрдых растворов [1, 10-18] в системах, стареющих при низких гомологических температурах. В ходе ячеистого распада фронт реакции перемещается в массив пересыщенного твёрдого раствора, образовавшегося после закалки от повышенных гомологических температур данного сплава. Этим перемещением реализуется поперечное диффузионное перераспределение компонентов в объёме превращения, в результате которого формируется эвтектоидноподобная структура, состоящая из чередующихся пластинок обеднённого твёрдого раствора и фазы выделения. Основными кинетическими параметрами ячеистого распада являются скорость перемещения фронта реакции (v) и величина межпластиночного расстояния (l). Последний параметр представляет ширину пути диффузии атомов растворённого элемента и вместе со значением коэффициента диффузии данных атомов мигрирующим фронтом ячеистой реакции D_b , толщиной этого фронта $-\lambda$ и сегрегационным фактором $-s$ связан с величиной v соотношением $v = (4s\lambda D_b)/l^2$.

Влияние легирования третьим элементом на v и $s\lambda D_b$ сплава Cu-4,35 ат.% Ti, состаренного при 873 К, исследовано в [17]. Из таблицы 1, где приведены значения установленных величин в порядке убывания v , видно, что из десяти использованных элементов лишь индий и никель ускоряют рост ячеек.

Таблица 1

Величины v , $s\lambda D_b$ и m_s для сплава Cu-4,35 ат.%Ti с добавками третьего элемента, состаренного при 873 К [17].

Количество третьего элемента, ат.%	$v \cdot 10^8$, м/с	$s\lambda D_b$, м ³ /с	$m_s \cdot 10^9$, Кл/м	$(m_{s3} - m_{sCu}) \cdot 10^9$, Кл/м
0,5 Ni	10,8	6,08	1,303	0,091
0,5 In	9,0	5,06	0,746	-0,466
Cu	-	-	1,212	-
4,35 Ti	7,0	3,94	0,751	-0,461
0,4 Ga	4,7	2,64	1,429	0,217
0,5 Mn	4,5	2,53	1,097	-0,115
0,5 Co	3,7	2,08	1,260	0,048
0,6 Cr	3,4	1,91	1,200	-0,012
0,5 Fe	3,1	1,74	1,267	0,055
0,3 Sn	3,1	1,74	0,928	-0,284
0,3 Zr	1,9	1,07	0,754	-0,458

Относительно ускоряющего либо замедляющего влияния легирования третьим элементом на подвижность фронта ячеистого распада ныне нет окончательного объяснения. Отдельные успехи в этом плане для отдельных металлических сплавов основываются на анализе разницы размеров атомов основного и присадочного элементов, максимальной растворимости примеси в основном металле, температуры её плавления или же её влияния на крутизну концентрационной зависимости параметра кристаллической решётки металл-растворителя не работают для других систем. В [17] выполнен анализ-допущение того, что более общим есть рассмотрение влияния третьего элемента на v исходя из анализа его роли в процессе образования фазы выделения т.е. его адсорбционной активности. Так, ещё в [1] результаты влияния легирования на v как раз интерпретировались с точки зрения наличия сегрегаций на границах зёрен в случае торможения роста ячеек либо их отсутствия в случае ускорения данного процесса. Однако и данный подход к решению проблемы также не даёт однозначного ответа. И тем не менее эффект влияния примеси на величину v должен зависеть от поведения примесных атомов на фронте реакции либо перед ним. В [17] сделана попытка связать горофильность или горофобность примесных атомов (табл. 1) со значениями их статистического обобщённого момента (m_s) и разницей между m_s и статистическим обобщённым моментом металла-основы (m_{sCu}).

В [18] на сплавах свинец-олово показано, что горофобные (поверхностно-инактивные) примеси тормозят ячеистый распад, тогда как горофильные (поверхностно-активные) могут его как ускорять, так и тормозить. К анализу результатов исследований [18] привлечено соотношение, описывающее изменение v вследствие легирования

$$\nu \sim \left(8V_m s \lambda D_b / RTl^2 \right) \left[G_c - (2\sigma/l) - (k\gamma/r_c) - G_{br} \right]. \quad (1)$$

Здесь V_m – молярный объём сплава; R – газовая постоянная; T – температура старения; G_c – химическая движущая сила процесса; G_{br} – энергия торможения границы зерна; σ и γ – удельная поверхностная энергия межфазных границ и энергия границ зёрен; k – соотношение распределения примеси в границе и в объёме зерна; r_c – атомный радиус примеси.

Горофобные примеси повышают σ и γ , содействуя тем самым формированию высокой $G_{br} \sim (1-k^2)$. В случае же горофильных примесей их влияние на ν будет определяться конкуренцией двух факторов: понижением σ и γ и повышением D_b и G_{br} .

Из табл.1 видно, что горофобные (относительно меди) примеси, такие как галлий, кобальт и железо тормозят рост ячеек в исследуемом сплаве, тогда как никель (тоже горофобный относительно меди) не понижает, а наоборот, повышает ν . В [17] это объясняется тем, что влияние горофобной примеси на поверхностную энергию σ тесно связан с концентрацией основного легирующего элемента (титана в нашем случае) в сплаве.

АНАЛИТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ВЛИЯНИЯ ЛЕГИРОВАНИЯ ТРЕТЬИМ ЭЛЕМЕНТОМ НА ПАРАМЕТРЫ ЯЧЕИСТОГО РАСПАДА ТВЁРДЫХ РАСТВОРОВ

Моделирование предлагается выполнить путём расчета энтальпий смешивания в бинарных твёрдых растворах и энтальпий сегрегации компонентов на границах зёрен для металлических систем на основе меди, в результате которого будет предпринята попытка установить связь этих параметров с изменением скорости ячеистого распада в сплаве Cu-4,35 ат. %Ti вследствие его легирования третьим компонентом.

Если для расчёта энтальпии концентрированных твёрдых растворов предположить, что атомы одного растворённого компонента случайно распределены в кристаллической решётке другого, то для решения такой задачи вполне возможен подход Миэдэми [19]. В данном случае энтальпия образования твёрдого раствора из чистых компонентов будет суммой трёх слагаемых: ΔH^{chem} – химической составляющей энергии взаимодействия, $\Delta H^{elastic}$ – упругой энергии и ΔH^{struct} – структурной энергии, которая в свою очередь отличается от нуля только для твёрдых растворов с переходными металлами. Таким образом

$$\Delta H^{form} = \Delta H^{chem} + \Delta H^{elastic} + \Delta H^{struct} \quad (2)$$

Обозначим концентрации элементов твёрдого раствора как c_A и c_B , а поверхностные концентрации компонентов на поверхностях их взаимодействия как c_A^S и c_B^S . Поверхности взаимодействия – понятие, предложенное Миэдэми для случая плотного заполнения пространства сферами влияния каждого компонента в бинарном сплаве

$$c_A^S = \frac{c_A V_A^{2/3}}{c_A V_A^{2/3} + c_B V_B^{2/3}}, \quad c_B^S = \frac{c_B V_B^{2/3}}{c_A V_A^{2/3} + c_B V_B^{2/3}}, \quad (3)$$

где V_A, V_B – молярные объёмы компонентов.

Расчет значений поверхностной энтальпии $\Delta H^{inter}(A \text{ in } B)$ и $\Delta H^{inter}(B \text{ in } A)$ для растворов А в В и В в А проводим из соотношения:

$$\Delta H^{chem}(ss) = c_A c_B [c_B \Delta H^{inter}(A \text{ in } B) + c_A \Delta H^{inter}(B \text{ in } A)] \quad (4)$$

Вторым слагаемым есть величина энтальпии упругого взаимодействия компонентов

$$\Delta H^{elastic}(ss) = c_A c_B [c_B \Delta H^{elastic}(A \text{ in } B) + c_A \Delta H^{elastic}(B \text{ in } A)] \quad (5)$$

Значения $\Delta H^{elastic}(A \text{ in } B)$ и $\Delta H^{elastic}(B \text{ in } A)$ находим через объёмный модуль K_A и модуль сдвига G_B [19]:

$$\Delta H^{elastic}(A \text{ in } B) = \frac{2K_A G_B (W_A - W_B)^2}{4G_B W_A + 3K_A W_B}, \quad \Delta H^{elastic}(B \text{ in } A) = \frac{2K_B G_A (W_B - W_A)^2}{4G_A W_B + 3K_B W_A} \quad (6)$$

Объёмы сфер влияния компонентов W_A и W_B рассчитаны из соотношений:

$$W_A = V_A + \alpha \frac{\varphi_A - \varphi_B}{n_{ws}^A}, \quad W_B = V_B + \alpha \frac{\varphi_A - \varphi_B}{n_{ws}^B}, \quad (7)$$

где n_{ws}^A и n_{ws}^B – плотности соответствующих элементов; φ_A и φ_B – параметры, характеризующие электротрицательность металлов; α – эмпирическая константа:

$$\alpha = 1.5 \frac{V_A^{2/3}}{\frac{1}{n_{ws}^{A/3}} + \frac{1}{n_{ws}^{B/3}}} \tag{8}$$

Для определения энтальпии зернограничной сегрегации бинарных сплавов используем модель [19], учитывающую расчет химической энтальпии и энтальпии упругого взаимодействия, связанного с различием размеров атомов компонентов. Согласно модели Мак-Лина [6] равновесная концентрация атомов, сегрегированных в границах зёрен, определяется как

$$\frac{x_{gb}}{1-x_{gb}} = \frac{x_c}{1-x_c} \exp\left(\frac{\Delta H^{seg}}{kT}\right), \tag{9}$$

где x_{gb} , x_c – мольные доли растворённого элемента в межфазных границах и в объёме зёрен; ΔH^{seg} – энтальпия сегрегации, положительное значение которой свидетельствует о тенденции границ зёрен к сегрегированию примесных атомов.

$$\Delta H^{seg} = -0.71 \cdot \frac{1}{3} \nu \cdot (-\Delta H^{inter}(AinB) - c_0 \gamma_B^S V_B^{2/3} + c_0 \gamma_A^S V_A^{2/3}) + \Delta E_{el}, \tag{10}$$

где $c_0 \gamma_A^S V_A^{2/3}$, $c_0 \gamma_B^S V_B^{2/3}$ – поверхностная энергия чистого металла, $c_0 = 4,5 \cdot 10^8$ – безразмерная полуэмпирическая константа.

Первое слагаемое выражения (10) отражает межатомную химическую составляющую энергии взаимодействия [20], а второе – есть энтальпия упругого взаимодействия атомов в границе зерна, возникающего при деформации:

$$\Delta E_{el} = \frac{24\pi N_{AV} K_A G_B r_A r_B (r_A - r_B)^2}{4G_B r_B + 3K_A r_A}, \tag{11}$$

где N_{AV} – постоянная Авогадро и r_A , r_B – атомные радиусы компонентов А и В.

$$r_A = \frac{3V_A^{1/3}}{4\pi N_{AV}}, \quad r_B = \frac{3V_B^{1/3}}{4\pi N_{AV}} \tag{12}$$

РЕЗУЛЬТАТЫ РАССМОТРЕНИЯ ПРЕДЛОЖЕННОЙ МОДЕЛИ

Для расчета энтальпии смешения в теле зерна бинарных твёрдых растворов медь-титан из выражений (2), (4), (5) и энтальпии сегрегации на границах зёрен из выражений (10), (11) с учётом как химического межатомного взаимодействия, так и упругого взаимодействия атомов использованы данные, приведенные в таблице 2.

Таблица 2

Параметры, использованные для расчётов в соответствии с [19]

	$V \cdot 10^{-6}$, м ³ /моль	$r \cdot 10^{-12}$, м	ρ , В	n_{ws} , ед. плотности	$K \cdot 10^{10}$, Па	$G \cdot 10^{10}$, Па
Cu	7,12	145	4,45	3,18	13,1	4,513
Ti	10,58	176	3,8	3,51	10,52	3,934
Ni	6,6	149	5,2	5,36	18,64	7,505
In	15,75	156	3,9	1,6	4,109	0,3728
Ga	11,82	136	4,1	2,25	5,69	3,747
Mn	7,35	161	4,45	4,17	5,967	7,652
Co	6,7	152	5,1	5,36	19,15	7,642
Cr	7,23	166	4,65	5,18	19,03	11,67
Fe	7,09	156	4,93	5,55	16,83	8,152
Sn	16,3	145	4,15	1,9	11,09	1,844
Zr	14	206	3,45	2,8	8,335	3,414

Результаты выполненных расчетов представлены в таблицах 3 и 4.

Расчёт плотности поверхностной энергии γ_{AB}^0 бинарных сплавов (см. табл. 6 и 7) по соотношению

$$\gamma_{AB} = c_A^S \gamma_A + c_B^S \gamma_B - c_A^S c_B^S \frac{\Delta H^{inter}(AinB)}{c_0 V_A^{2/3}} \tag{13}$$

выполнен на основании обобщения модели Миэдэми Бенедиктусом [21] и с учётом значений поверхностной

концентрации элементов c_A^S , c_B^S , энтальпии взаимодействия компонентов $\Delta H^{inter}(Ain B)$, а также поверхностных энергий чистых компонентов бинарного сплава γ_A , γ_B [19], приведенных в таблице 5.

Плотности поверхностной энергии в границах зёрен сплавов γ_{AB}^0 на основе Cu приведены в таблице 6, а на основе Ti – в таблице 7.

Таблица 3

Рассчитанные величины энтальпий в бинарных сплавах на основе Cu.

	ΔH^{chem} , Дж/моль	$\Delta H^{elastic}$, Дж/моль	ΔH^{form} , Дж/моль	ΔH_m^{chem} , Дж/моль	ΔE_{el} , Дж/моль	ΔH_m^{seg} , Дж/моль
Cu-Ni	-2226,3	787,2	-1439,3	-8280,2	1116,4	-7163,8
Cu-In	-109,0	9591,1	9482,1	12719,7	18149,9	30869,6
Cu-Ti	-9010,3	7628,6	-1381,6	-22659,1	26218,4	3559,3
Cu-Ga	-731,4	8714,3	7982,9	4641,2	52386,9	57028,1
Cu-Mn	3750,0	91,5	3841,5	5533,8	209,8	5743,6
Cu-Co	6377,5	503,8	6881,4	-9215,3	730,7	-8484,5
Cu-Cr	12498,7	0,0	12498,7	-3791,9	60,0	-3731,9
Cu-Fe	12875,5	84,9	12960,4	-6401,3	3,8	4397,6
Cu-Sb	-319,7	26699,6	26379,9	12043,4	84149,2	96192,6
Cu-Zr	-22613,4	21237,7	-1375,7	-38913,4	81356,2	42442,8

Таблица 4

Рассчитанные величины энтальпий в бинарных сплавах на основе Ti.

	ΔH^{chem} , Дж/моль	$\Delta H^{elastic}$, Дж/моль	ΔH^{form} , Дж/моль	ΔH_m^{chem} , Дж/моль	ΔE_{el} , Дж/моль	ΔH_m^{seg} , Дж/моль
Ti-Ni	-34454,0	11406,0	-23047,9	-6921,1	47573,6	40652,4
Ti-In	357,2	3568,4	3925,6	30904,8	5156,8	36061,6
Ti-Ga	-684,9	723,0	38,1	22635,6	2341,6	24977,2
Ti-Mn	-8159,4	5871,1	-2288,3	18134,6	30255,6	48390,2
Ti-Co	-28190,5	10908,6	-17281,9	-6554,5	45379,8	38825,3
Ti-Cr	-7405,3	8526,8	1121,5	4903,9	40251,9	45155,7
Ti-Fe	-16801,0	9043,2	-7757,8	-2083,9	37105,4	35021,5
Ti-Sn	-253,3	9621,1	9367,7	30002,0	25564,1	55566,0
Ti-Zr	-250,0	3633,3	3383,3	-8089,3	15447,7	7358,4

Таблица 5

Поверхностные энергии чистых компонентов γ в твёрдом растворе

	Ti	Cu	Ni	In	Ga	Mn	Co	Cr	Fe	Sn	Zr
γ , Дж/м ²	2,1	1,875	2,45	0,675	1,1	1,6	2,55	2,3	2,475	0,675	2

Таблица 6

Плотности поверхностной энергии γ_{AB}^0 в границах зёрен сплавов на основе Cu

	0,5 Ni	0,5 In	4,35 Ti	0,4 Ga	0,5 Mn	0,5 Co	0,4 Cr	0,5 Fe	0,3 Sn	0,3 Zr
γ_{AB}^0	1,8276	1,8154	1,8501	1,8211	1,8234	1,8277	1,8261	1,8267	1,8191	1,8278

Таблица 7

Плотности поверхностной энергии γ_{AB}^0 в границах зёрен сплавов на основе Ti.

	0,5 Ni	0,5 In	0,4 Ga	0,5 Mn	0,5 Co	0,4 Cr	0,5 Fe	0,3 Sn	0,3 Zr
γ_{AB}^0	2,1839	1,9157	2,0125	2,072	2,1816	2,1333	2,1581	1,9817	2,0926

Из анализа данных таблицы 1 видно, что гидрофобность примесей относительно меди проявляется неоднозначно. Так галлий, кобальт и железо тормозят рост ячеек в сплаве Cu-4,35 ат. %Ti, никель же, наоборот, повышает скорость их роста.

Рассмотрим лишь случаи добавления никеля и кобальта в упомянутый сплав в связи с тем, что

расчитанные энтальпии сегрегации (таблицы 2 и 3) $\Delta H_{TiNi}^{seg} = 40,6$ кДж/моль и $\Delta H_{TiCo}^{seg} = 38,8$ кДж/моль имеют для них приблизительно одинаковые значения так же как и энтальпии сегрегации на границах зёрен $\Delta H_{CuNi}^{seg} = -7,2$ кДж/моль и $\Delta H_{CuCo}^{seg} = -8,5$ кДж/моль. Вследствие приблизительного равенства радиусов атомов никеля и кобальта такими же близкими за счёт упругого взаимодействия как в объёме зёрен ($\Delta H^{elastic}$), так и на их границах (ΔE_{el}) оказываются значения энтальпии сегрегации.

Из таблицы 4 видно, что и поверхностные энергии чистых никеля и кобальта близки, а так же попарно подобная близость этих величин наблюдается для сплавов Cu-0,5Ni и Cu-0,5Co, Ti-0,5Ni и Ti-0,5Ni. Данный пример наглядно свидетельствует о том, что небольшая добавка никеля в пересыщенный твёрдый раствор Cu-4,35 ат.%Ti почти вдвое ускоряет его ячеистый распад, а столь же небольшая добавка кобальта, наоборот, почти вдвое замедляет данный процесс. Это обусловлено различием величин энтальпий смешивания твёрдого раствора ΔH^{chem} , зависящих от межатомного взаимодействия в объёмах зёрен. Отмеченные различия есть причиной изменения G_{br} – энергии торможения границ зёрен примесями, чем обуславливается необходимость решения задачи диффузионного перераспределения компонентов как перед мигрирующим фронтом ячеистого распада, так и поперёк него [22].

ВЫВОДЫ

Для описания экспериментально установленного влияния добавок третьего компонента на скорость миграции фронта ячеистого распада пересыщенных твёрдых растворов впервые использован термодинамический подход Миэдэми и его обобщение для расчёта энтальпии сегрегации примесных атомов на границах зёрен как с учётом значений энергии межатомного взаимодействия, так и величин энергии упругого взаимодействия, связанных с различиями в размерах атомов.

Установлено, что в случае добавки в бинарный сплав атомов третьего элемента с близкими по величине атомными радиусами ускорение или торможение фронта ячеистой реакции скорее всего определяет различие коэффициентов диффузии данных атомов перед фронтом.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Larikov L.N., Shmatko O.A. Jacheistyj raspada peresyshhennyh tverdyh rastvorov. – K.: Naukova dumka, 1976. – 259 s.
- Zieba P. Local Characterization of Chemistry and Kinetics in Discontinuous Solid State Reactions. Cracow : Polish Academy of Sciences, Institute of Metallurgy and Material Science, 2001. – 368 p.
- Kirchheim R. Grain coarsening inhibited by solute segregation // Acta mater. – 2002. – Vol. 50. – P. 413-419.
- Darling K.A., van Leeuwen B. K., Koch C. C., Scattergood R. O. Thermal stability of nanocrystalline Fe-Zr alloys // Mater. Sci. Eng. A. – 2010. – Vol. 527. – P. 3572-3580.
- Lejček P. Grain Boundary Segregation in Metals. – Heidelberg, Germany: Springer, 2010. – 252 p.
- McLean D. Grain Boundaries in Metals. – London: Oxford Univ., 1957. – 346 p.
- Wynblatt P., Chatain D. Anisotropy of Segregation at Grain Boundaries and Surfaces // Metall. and Mat. Trans. A. – 2007. - Vol. 38. – No. 2. – P. 438 – 439.
- Wynblatt P., Ku R.C. Surface energy and solute strain energy effects in surface segregation // Surface Science. – 1977. – Vol. 65. – P. 511-523.
- Guttman M. Grain boundary segregation, two dimensional compound formation, and precipitation // Met. Trans. A. – 1977. - Vol. 8. – No. 9. – P. 1383 - 1401.
- Cahn J.W. The impurity-drag effect in grain boundary motion // Acta Met. – 1962. - Vol.10. – No.9. – P. 789 – 798.
- Hillert M., Sundman B. A treatment of the solute drag on moving grain boundaries and phase interfaces in binary alloys // Acta Met. – 1976. – Vol. 24. – No.8. – P. 731 – 743.
- Rabkin E., Gust W., Estrin Y. On dynamic segregation in the discontinuous precipitation reaction // Scripta Mater. – 1997. - Vol. 37. – No.1. – P. 119. – 124.
- Kaur I., Gust V. Diffuzija po granicam zeren i faz. – M., 1991. – 448 s.
- Cahn J.W. The kinetics of cellular segregation reactions // Acta Met. – 1959. – Vol.7. – No. 1. – P. 18 – 28.
- Ljashenko Ju.A. Model' jacheistogo raspada splavov na osnove balansa i maksimuma proizvodstva jentropii // Pis'ma v ZhTF. – 2004. – T. 30. – No. 3. – S. 54 – 61.
- Aaronson H.I., Liu Y.C. On the Turnbull and the Cahn theories on the cellular precipitation // Scr. Met. – 1968. - Vol.2. – No. 1. – P. 1 – 8.
- Gacenko T.S., Ljashenko Ju.A., Shmatko O.A. Vplyv tret'ogo elementu na shvydkist' komirkovogo rozpadu v splavi Cu-4,35 at.%Ti // Visnyk Cherkas'kogo nacional'nogo universytetu. – 2013. – Vyp. 269. – S. 31-37.
- Afanas'ev N.I., Elsukova T.F. Vlianie primesej na skorost' preryvistogo raspada splavov svinec-olovo // FMM. – 1984. – T. 57. – No. 1. – S. 96 – 101.
- Bakker H. Enthalpies in Alloys – Miedema's Semi-Empirical Model. – Switzerland: Trans. Tech. Publications Ltd., 1998. – 78 p.
- Murdoch A. Design of a Stable Nanocrystalline Alloy. – Massachusetts Institute of Technology, 2013. – 216 p.
- Benedictus R., Bottger A., Mittemeijer E.J. Thermodynamic model for solid-state amorphization in binary systems at interfaces and grain boundaries. – Rotterdamseweg: Lab. of Mat. Sci., Delft University of Technology, 1996. – P. 17.
- Ljashenko Ju.A., Gladka L.I., Shmatko I.O. Modeljuvannja vplyvu segregaciji na ruh mezhi zerna na prykladi komirkovogo rozpadu // Metallofizika i novejshe tehnologii. – 2012. – T. 12. – S. 1693-1713.

PACS: 23.20.Nx, 29.25.Bx 87.59.B-, 24.10.Lx

BREMSSTRAHLUNG FORMATION IN THE DUAL ENERGY METHOD FOR RADIOGRAPHY OF THE UNAUTHORIZED EMBEDDING

V.G. Rudychev¹, I.O. Girka¹, D.V. Rudychev¹, Y.V. Rudychev^{1,2}

¹ V.N. Karazin Kharkiv National University
Svobody Sq. 4, 61022, Kharkov, Ukraine

² National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"
Akademicheskaya str., 1, 61108, Kharkov, Ukraine
e-mail: rud@pht.univer.kharkov.ua

Received May 4, 2016

The possibility of an effective method of dual-energy radiography unauthorized inclusions containing heavy elements in cargo containers has been investigated. A method for optimizing the energy performance of the bremsstrahlung radiation: low-energy beam (containing the maximum number of photons in the energy range, which is dominated by Compton effect) and high energy beam (with a maximum number of high-energy photons, electron-positron pairs) has been developed. The influence of the converter thickness and converter material on the spectral characteristics of the beams of photons has been investigated. The variants of tree-layers efficient converters have been proposed. On the basis of the Monte Carlo and quasi-analytical method a numerical experiment radiography investments has been completed. It is shown that the use of optimally shaped beams can reliably distinguish embedding from lead to masking the background of steel structures up to 25 cm

KEY WORDS: dual-energy radiography; bremsstrahlung beams; unauthorized embedding; cargo containers; Monte Carlo method

ФОРМИРОВАНИЕ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В МЕТОДЕ ДУАЛЬНЫХ ЭНЕРГИЙ ДЛЯ РАДИОГРАФИИ НЕСАНКЦИОНИРОВАННЫХ ВЛОЖЕНИЙ

В.Г. Рудычев¹, И.А. Гирка¹, Д.В. Рудычев¹, Е.В. Рудычев^{1,2}

¹ Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина
61022, пл. Свободы, 4, Харьков, Украина

² Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
61108, ул. Академическая, 1, Харьков, Украина

Исследована возможность эффективной радиографии методом дуальных энергий несанкционированных вложений, содержащих тяжелые элементы, в грузовых контейнерах. Разработана методика оптимизации характеристик пучков тормозного излучения: низкоэнергетического (содержащего максимальное количество фотонов в диапазоне энергий, где доминирует Комптон-эффект) и высокоэнергетического (с максимальным количеством фотонов высоких энергий, рождение электрон-позитронных пар). Исследовано влияние толщины и материала конвертеров на спектральные характеристики пучков фотонов, предложены варианты эффективных трехслойных конвертеров. На основе метода Монте-Карло и квазианалитического метода смоделирован численный эксперимент радиографии вложений. Показано, что применение оптимально сформированных пучков позволяет достоверно выделить вложения из свинца на маскирующем фоне стальных конструкций до 25 см.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: метод дуальных энергий; радиография; тормозное излучение; несанкционированные вложения; метод Монте-Карло

ФОРМУВАННЯ ГАЛЬМІВНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ В МЕТОДІ ДУАЛЬНИХ ЕНЕРГІЙ ДЛЯ РАДІОГРАФІЇ НЕСАНКЦІОНОВАНОГО ВКЛАДЕНЬ

В.Г. Рудичев¹, І.О. Гірка¹, Д.В. Рудичев¹, Є.В. Рудичев^{1,2}

¹ Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
площа Свободи 4, 61022, Харків, Україна

² Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»
61108, вул. Академічна, 1, Харків, Україна

Досліджено можливість ефективної радіографії методом дуальних енергій несанкціонованих вкладень, що містять важкі елементи, в вантажних контейнерах. Розроблено методику оптимізації характеристик пучків гальмівного випромінювання: низькоенергетичного (яке містить максимальну кількість фотонів в діапазоні енергій, де домінує Комптон-ефект) і високоенергетичного (з максимальною кількістю фотонів високих енергій, народження електрон-позитронного пар). Досліджено вплив товщини і матеріалу конвертерів на спектральні характеристики пучків фотонів, запропоновані варіанти ефективних тришарових конвертерів. На основі методу Монте-Карло і квазіаналітичного методу змодельований чисельний експеримент радіографії вкладень. Показано, що застосування оптимально сформованих пучків дозволяє достовірно виділити вкладення зі свинцю на маскуючому тлі сталевих конструкцій до 25 см.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: метод дуальних енергій; радіографія; гальмівне випромінювання; несанкціоновані вкладення; метод Монте-Карло

Инспекция несанкционированных вложений, перевозимых в грузовых контейнерах и большегрузных автомобилях, осуществляется, в основном, методом радиографии на основе рентгеновского излучения. Для улучшения качества радиографического изображения используют метод дуальных энергий [1]. Он основан на

использовании двух пучков тормозного излучения (BS) генерируемых электронами с энергией $E_e = 3 - 5$ MeV (BS1) и $E_e = 8 - 10$ MeV (BS2). Прохождение BS1 сквозь инспектируемый объект слабо зависит от элементного состава груза, а прохождение BS2 зависит от атомного номера Z инспектируемых грузов. В [2] показано, что метод дуальных энергий обладает недостаточным разрешением по дискриминации элементов при больших толщинах инспектируемых объектов.

В настоящее время не решена проблема идентификации вложений из радиоактивных материалов, размещенных в свинцовых контейнерах («грязная» бомба), боеприпасов, содержащих свинец, на маскирующем фоне, например, в стальных конструкциях. В настоящей работе исследована возможность выявления на маскирующем фоне перевозимых грузов вложений, содержащих тяжелые элементы, методом дуальных энергий.

Целью настоящей работы является определение оптимальных условий формирования BS, обеспечивающих при прохождении пучка BS1 максимальную независимость от элементного состава груза, а для пучка BS2 - максимальную зависимость от атомного номера Z компонентов груза.

МЕТОДИКА РАСЧЕТОВ

Рассмотрим регистрацию фотонов в детекторе толщиной t_d при прохождении пучка тормозного излучения через инспектируемый объект толщиной t ($t \gg t_d$). В приближении узкого пучка (лучевое приближение) в детекторе выделяется энергия \mathcal{E} , определяемая соотношением [3]:

$$\mathcal{E}(E_e, t, Z) = \int_0^{E_e} F_{bd}(E, E_e, t_d) \cdot \exp[-\mu(E, Z) \cdot t] dE, \quad (1)$$

где $F_{bd}(E, E_e, t_d) = E \cdot t_d \cdot \mu_{en}(E) \cdot dI(E_e, E) / dE$ – множитель, зависящий от характеристик детектора и спектра BS, $\mu_{en}(E)$ – массовый коэффициент поглощения энергии в детекторе, $dI(E_e, E) / dE$ – спектральное распределение фотонов, создаваемое электронами с энергией E_e , $\mu(E, Z)$ – полный массовый коэффициент поглощения фотонов в инспектируемом объекте с элементным составом Z .

Экспоненту в соотношении (1) удобно представить в виде трех множителей:

$$\exp[-\mu(E, Z) \cdot t] = \exp[-\mu_{ph}(E, Z) \cdot t] \cdot \exp[-\mu_C(E, Z) \cdot t] \cdot \exp[-\mu_P(E, Z) \cdot t], \quad (2)$$

где μ_{ph} , μ_C , и μ_P – массовые коэффициенты поглощения фотонов за счет фотоэффекта, комптоновского рассеяния и рождения электрон-позитронных пар, соответственно. Определим обратную величину каждого из сомножителей в (2) как фактор ослабления потока γ -квантов за счет фотоэффекта, Комптон-эффекта и рождения пар.

Известно [4], что фотоны с энергиями $E < 0,2$ MeV эффективно поглощаются за счет фотоэффекта. Массовый коэффициент поглощения фотонов сильно зависит от атомного номера поглотителя Z и $\mu_{ph} \propto Z^5$. При более высоких энергиях фотонов ($0,2 \leq E \leq 5$ MeV) основной вклад в поглощение дает комптоновское рассеяние, которое слабо зависит от атомного номера вещества мишени и $\mu_C \propto Z/A = 0,4 - 0,5$, где A – атомный вес. При энергиях фотонов свыше 5 MeV существенный вклад в поглощение вносит образование пар и $\mu_P \propto Z^2/A \propto Z$. Интервалы энергий, в которых доминируют различные эффекты поглощения фотонов, существенно зависят от элементного состава мишени. Эти особенности взаимодействия γ -квантов разных энергий с веществом используются в методе дуальных энергий. Эффективность этого метода является максимальной при соблюдении следующих двух условий:

1) прохождение низкоэнергетического пучка тормозного излучения (BS1) не зависит от элементного состава инспектируемого объекта;

2) прохождение высокоэнергетического пучка тормозного излучения (BS2) зависит от элементного состава инспектируемого объекта.

Это означает, что в спектре BS1 должно быть максимальное количество фотонов в диапазоне энергий доминирования Комптон-эффекта. В высокоэнергетическом пучке BS2 должно присутствовать максимальное содержание фотонов с высокими энергиями, обеспечивающих рождение электрон-позитронных пар.

Определим вклад в ослабление потока фотонов за счет Комптон-эффекта по сравнению с фотоэффектом и рождением пар $\xi_C(E, t)$ следующим отношением факторов ослабления:

$$\xi_C(E, t, Z) = \exp[\mu_C(E, Z) \cdot t] / \{ \exp[\mu_{ph}(E, Z) \cdot t] \cdot \exp[\mu_P(E, Z) \cdot t] \}, \quad (3)$$

При вложении в объект тяжелых элементов (например, Pb), в соотношении (3) функция ослабления потока фотонов $\xi_C(E, t_0, Z)$ переходит в $\xi_C(E, t_0, t_{Pb}, Z, Pb)$. Выполняются следующие замены: вместо сомножителя $\mu_C(E) \cdot t_0$ подставляем слагаемые $\mu_C(E, Z) \cdot (t_0 - t_{Pb}) + \mu_C(E, Pb) \cdot t_{Pb}$. Для сомножителей $\mu_{ph}(E, Z) \cdot t_0$ и

$\mu_p(E, Z) \cdot t_0$ выполняем аналогичные подстановки. Это справедливо при условии, что полная массовая толщина инспектируемого объекта t_0 не изменяется. Т.е. при вложении в объект свинца толщиной t_{Pb} массовая толщина материала объекта с атомным номером Z составляет $(t_0 - t_{Pb})$.

Как правило, в составе инспектируемых крупногабаритных объектов не содержится тяжелых элементов с $Z > 40$. Поэтому рассмотрим некий модельный материал MOD, в составе которого нет тяжелых элементов. Массовые коэффициенты ослабления фотонов определяются для такого материала путем усреднения μ_{Pb} , μ_C и μ_r для элементов с Z от 6 до 42, т.е. \bar{Z} [5]. Усреднение исключает как тяжелые элементы, так и водород. Это связано с тем, что водород находится в связанном состоянии (H_2O , полиэтилен и т.д.), и массовые коэффициенты ослабления таких веществ определяются кислородом, углеродом, и т.п. Отметим, что полный массовый коэффициент ослабления модельного материала MOD близок к коэффициенту ослабления для железа $\mu(E, \bar{Z}) \approx \mu(E, Fe)$.

Определим интервал энергий $\Delta E = E_{max} - E_{min}$ в котором ξ_C больше некоторой, наперед заданной величины, например $\xi_C \geq 10$, т.е. интервал энергий где доминирует Комптон-эффект. На рис.1 приведены зависимости вкладов в ослабление потока фотонов $\xi_C(E, t_0, \bar{Z})$ за счет Комптон-эффекта для материала MOD, толщиной $t_0 = 100$ (кривая $100 \bar{Z}$) и 200 (кривая $200 \bar{Z}$) g/cm^2 .

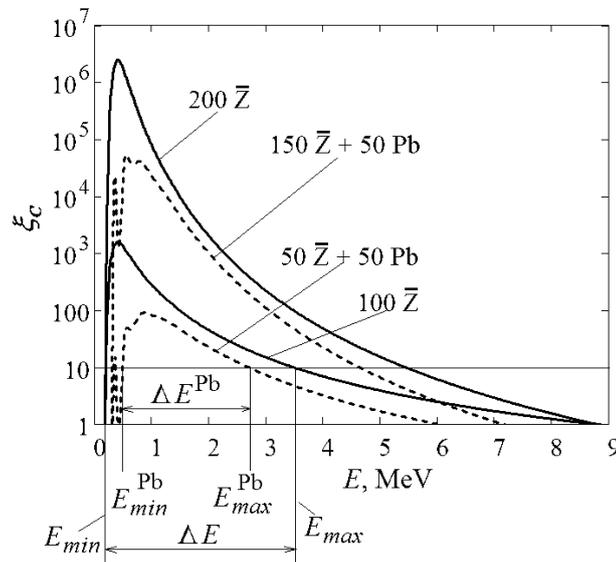


Рис. 1. Вклады в ослабление потока фотонов за счет Комптон-эффекта по сравнению с фотоэффектом и рождением пар в объекте $\xi_C(E, t, \bar{Z})$ и в объекте, содержащем вложение из свинца $\xi_C(E, t, t_{Pb}, \bar{Z}, Pb)$.

Аналогичные зависимости вкладов в ослабление потока фотонов $\xi_C(E, t_0, t_{Pb}, \bar{Z}, Pb)$ для этого же материала с вложением из Pb толщиной $t_{Pb} = 50 g/cm^2$ (суммарная толщина в этом случае также равна 100 (кривая $50 \bar{Z} + 50 Pb$) и 200 (кривая $150 \bar{Z} + 50 Pb$) g/cm^2). Из приведенных данных следует, что увеличение массовой толщины объекта t_0 приводит к расширению диапазона энергий ΔE в которых доминирует Комптон-эффект, а наличие вложений из тяжелых элементов, например Pb, к уменьшению этого диапазона ΔE^{Pb} .

Проведенный анализ показывает, что низкоэнергетический пучок BS1 должен содержать максимальное число фотонов в диапазоне энергий от $E_{min} \sim 0,4 - 0,5$ MeV до $E_{max} \sim 2,8 - 3,3$ MeV. Долю фотонов $RL(E_{max}, E_{min}, E_e)$ в интервале энергий $E_{min} \leq E \leq E_{max}$ определим из следующего соотношения:

$$RL(E_{min}, E_{max}, E_e) = \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dI_L(E, E_e)}{dE} dE \Bigg/ \int_0^{E_e} \frac{dI_L(E, E_e)}{dE} dE . \quad (4)$$

Для высокоэнергетического пучка BS2 максимальным должно быть число фотонов, энергия которых находится в диапазоне от E_{max} до E_e . Доля фотонов $RH(E_{max}, E_e)$, энергия которых больше E_{max} , определяется следующим соотношением:

$$RH(E_{max}, E_e) = \int_{E_{max}}^{E_e} \frac{dI_H(E, E_e)}{dE} dE \Bigg/ \int_0^{E_e} \frac{dI_H(E, E_e)}{dE} dE . \quad (5)$$

ОПТИМИЗАЦИЯ ТОЛЩИНЫ КОНВЕРТОРОВ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

В настоящий момент не существует аналитических методов расчета характеристик BS, генерируемых электронами с энергией в несколько MeV. Характеристики BS рассчитывают с использованием методов Монте Карло в различных программных пакетах. Поэтому для различных применений BS (радиография или радиационные технологии) в публикациях приводятся для конвертеров такие данные: количество и материал слоев, их толщина, энергия электронов. Как правило, 1-й слой выполняется из тяжелых и тугоплавких материалов, таких как Ta или W.

Таблица 1.

Выход фотонов Y и доля фотонов RH с энергией $E > 3,1$ MeV в спектре BS1, для разных энергий электронов и толщин конвертера из Ta.

$t_c, \text{g/cm}^2$ E_e, MeV		1	2	3	4	5	6	8
3,5	$Y, \%$	2,46	1,87	1,58	1,42	1,28	1,18	1,01
	$RH(E \geq 3,1), \%$	0,25	0,28	0,38	0,40	0,44	0,46	0,51
4	$Y, \%$	3,07	2,53	2,11	1,91	1,73	1,57	1,35
	$RH(E \geq 3,1), \%$	0,93	1,30	1,46	1,62	1,59	1,71	1,93
4,5	$Y, \%$	3,74	3,22	2,76	2,46	2,25	2,05	1,78
	$RH(E \geq 3,1), \%$	2,56	2,48	2,77	2,98	3,18	3,43	3,44
5	$Y, \%$	4,54	4,02	3,45	3,11	2,78	2,59	2,22
	$RH(E \geq 3,1), \%$	3,80	3,75	4,27	4,68	4,73	5,03	5,43
5,5	$Y, \%$	5,27	4,89	4,20	3,77	3,45	3,21	2,76
	$RH(E \geq 3,1), \%$	5,30	5,15	5,74	6,13	6,52	6,96	7,25
6	$Y, \%$	6,08	5,85	5,05	4,54	4,16	3,91	3,29
	$RH(E \geq 3,1), \%$	6,80	6,37	7,13	7,63	8,05	8,43	8,88

Для моделирования генерации фотонов электронами с разными энергиями на конверторах с различным элементным составом нами использовался метод Монте-Карло, реализованный в пакете PENELOPE [6,7]. Нами была выполнена модификация программного пакета PENELOPE, позволяющая определять спектральные характеристики BS под разными углами вылета фотонов. На примере однослойных конвертеров из Ta разной толщины рассмотрено формирование пучков BS. В таблице 1 приведены выходы фотонов Y (Y - это количество γ -квантов, генерируемое 1-м электроном в угловом интервале $0 - 12^\circ$) для различных толщин конвертера и энергий электронов. Зависимости выходов фотонов от толщины конвертера в угловом интервале $0 - 12^\circ$ аналогичны хорошо известным зависимостям выхода BS вперед. Для этих зависимостей характерно наличие максимума, в нашем случае вблизи $t_c = 1 \text{ g/cm}^2$. С увеличением энергии электронов положение максимума смещается в сторону больших толщин конвертера, например, для энергии $E_e = 6 \text{ MeV}$, максимум вблизи $t_c = 1,5 \text{ g/cm}^2$. Содержание фотонов в спектрах определялось на 3-х энергетических интервалах: $0 < E < 0,5$; $0,5 \leq E < 3,1$ и $E \geq 3,1$. Для энергий фотонов в диапазоне $0,5 \leq E < 3,1$, где доминирует поглощение за счет Комpton-эффекта, на рис. 2 приведены зависимости величины RL (4) от энергии электронов для различных толщин конвертеров t_c .

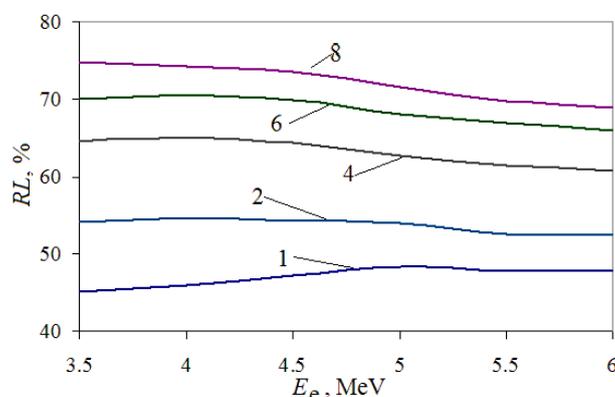


Рис.2. Зависимости доли фотонов RL с энергиями $0,5 \leq E < 3,1$ от энергии электронов E_e для конвертеров из Ta толщиной $t_c = 1, 2, 4, 6$ и 8 g/cm^2 .

При $t_c \geq 2 \text{ g/cm}^2$ с ростом энергии электронов E_e величина $RL(0,5, 3,1, E_e)$ медленно уменьшается. В диапазоне энергий $E_e \sim 4 - 4,5 \text{ MeV}$ наблюдается слабо выраженный максимум величины RL . Отметим, что с

увеличением энергии электронов E_e и толщины конвертера доля высокоэнергетических фотонов с энергиями $E > 3,1$ MeV растет практически линейно (таблица 2).

Анализ данных, приведенных в таблице 1 и рис. 2, показывает, что однозначного выбора энергии начальных электронов E_e и толщины конвертера t_c для оптимальной генерации фотонов в области энергий $0,5 < E < 3,1$ MeV не существует.

Максимальную энергию электронов, используемых для генерации BS в радиографических методах, ограничивает образование наведенной активности. Рассмотрим влияние толщины конвертеров из Ta и Pb на характеристики пучка BS2, создаваемого электронами с энергией $E_e = 9$ MeV. Доля фотонов RH с энергиями выше 3,1 MeV в спектре BS2 и выходы фотонов на 1 электрон в зависимости от толщины конвертеров приведены на рис. 3, интервал углов фотонов $0 - 12^\circ$. При малых толщинах конвертеров ($t_c < 2$ g/cm²) выходы фотонов и содержание высокоэнергетических фотонов в спектрах практически одинаковы для Pb и Ta. При $t > 2$ g/cm² выходы фотонов для конвертеров из Ta больше (~ 4 - 10 %), а содержание высокоэнергетических фотонов ($E \geq 3,1$) в спектре меньше (~ 4 - 9 %). Расчеты показывают, что после прохождения слоя из Ta или Pb толщиной $t_c = 3$ g/cm² средняя энергия электронов уменьшается до 3,3 MeV за счет ионизационных и радиационных потерь. Дальнейшее увеличение толщины конвертера приводит к сильному поглощению низкоэнергетических ($E < 0,5$) фотонов, особенно в Pb. Слои конвертера являются поглотителем низкоэнергетических фотонов для высокоэнергетического пучка при $E_e = 9$ MeV при $t_c > 3$ g/cm², а для низкоэнергетического пучка (диапазон энергий электронов $3,5 < E_e < 6$) при $t_c > 2$ g/cm². Следовательно, увеличение толщины конвертера в случае низкоэнергетического пучка BS1 приводит к увеличению доли фотонов в области доминирования Комpton-эффекта. Для высокоэнергетического пучка BS2 рост толщины конвертера дает увеличение доли фотонов как высокой энергии, так и в диапазоне доминирования Комpton-эффекта. Отметим, что при этом падает общий выход фотонов Y . Нами предлагаются оптимальные варианты трехслойных конвертеров, по форме они аналогичны конвертерам, используемым для технологических целей [8]. Отличие заключается в третьем слое, который в нашем случае выполняет роль поглотителя низкоэнергетических фотонов $E < 0,5$ MeV. Одним из вариантов может быть следующая комбинация слоев: 1-й слой – 2 g/cm² - низкоэнергетический пучок, 3 g/cm² - высокоэнергетический пучок Ta или W, в этих слоях происходит генерация тормозного излучения; 2-й слой – вода, она предназначена для охлаждения первого слоя и поглощения, прошедших сквозь него низкоэнергетических электронов с энергией $E_e < 3,3$; 3-й слой из Pb предназначен для поглощения низкоэнергетических фотонов ($E < 0,5$). Толщина слоя Pb определяется допустимым выходом фотонов на 1 электрон (рис.3).

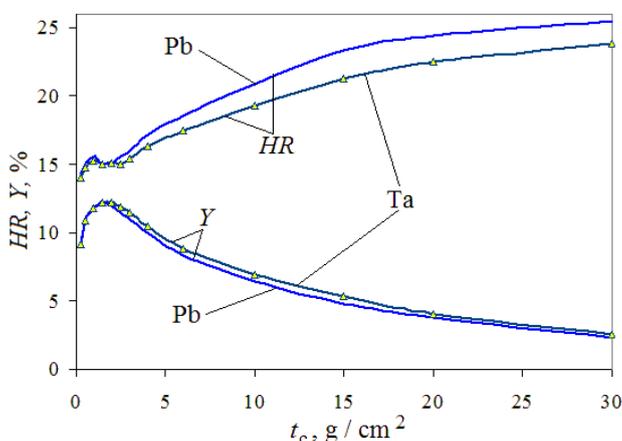


Рис.3. Доля фотонов RH с энергиями $3.1 < E < 9$ MeV в спектре BS2 и выходы фотонов Y на 1 электрон в зависимости от толщины конвертеров t_c .

МЕТОДИКА И РАСЧЕТ ВЛОЖЕНИЙ ИЗ МАТЕРИАЛОВ С БОЛЬШИМ АТОМНЫМ НОМЕРОМ

При радиографическом методе контроля основной измеряемой величиной является прозрачность инспектируемого объекта. Прозрачность объекта $T(E_e, t)$ определяется соотношением:

$$T(E_e, t) = \mathcal{E}(E_e, t, Z) / \mathcal{E}(E_e, 0, 0), \quad (6)$$

где $\mathcal{E}(E_e, 0, 0)$ – энергия, выделенная в детекторах, установленных перед инспектируемым объектом, а $\mathcal{E}(E_e, t, Z)$ – энергия в детекторах, установленных за инспектируемым объектом толщиной t . Прозрачность T зависит от нескольких факторов: спектрального состава BS (т.е. параметров конвертера и энергии электронов), толщины объекта t и элементного состава материалов объекта Z .

В соответствии с выводами предыдущего раздела для низкоэнергетического пучка BS1 рассмотрим энергию электронов $E_e = 4,5$ MeV и трехслойный конвертер 1 с толщиной слоев: Ta – 0,12 cm (2 g/cm^2), H₂O – 0,5 cm, Pb – 1,2 cm (суммарная толщина конвертера = $16,12 \text{ g/cm}^2$). Выход фотонов у такого конвертера ~ 1 % в угловом интервале 0 - 12°.

Высокоэнергетический пучок BS2 генерируется электронами с энергией 9 MeV на трехслойном конвертере 2 с толщиной слоев Ta – 0,18 cm (3 g/cm^2), H₂O – 1,3 cm, Pb – 1,5 cm (суммарная толщина конвертера равна $21,5 \text{ g/cm}^2$). Для такого конвертера выход фотонов ~ 3,5 % в угловом интервале 0 – 12°. Спектральные распределения фотонов BS1 и BS2, сформированные 3-х слойными конвертерами, приведены на рис. 4.

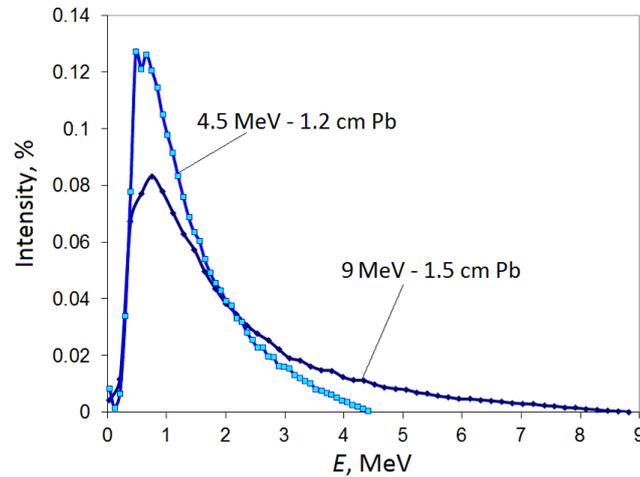


Рис. 4. Спектральные распределения фотонов тормозного излучения BS1 ($E_e = 4,5$ MeV) и BS2 ($E_e = 9$ MeV), использованы конвертеры (Ta, H₂O, Pb).

Оба приведенных спектра характеризуются малым содержанием низкоэнергетических гамма-квантов. Рассмотрим модель инспектируемого объекта, для которого в перевозимых металлических конструкциях сделана специальная выемка. В эту выемку помещен объект, например, из свинца с массовой толщиной t_{pb} . Для маскировки несанкционированного вложения массовую толщину перевозимого металла (сталь - Fe) и материала с вложением Fe + Pb подбирают одинаковой и равной t_0 . В этом случае экспоненциальные факторы ослабления имеют вид:

$$\exp[\mu(E, Fe) \cdot t_0], \quad (7a)$$

$$\exp[\mu(E, Fe) \cdot (t_0 - t_{pb}) + \mu(E, Pb) \cdot t_{pb}]. \quad (7b)$$

Вследствие разной зависимости от энергии фотонов массовые коэффициенты поглощения для Fe (или другого относительно легкого материала) и Fe + Pb при прохождении пучками фотонов BS1 и BS2 отличаются, несмотря на одинаковую массовую толщину t_0 .

Пусть T_1^{ex} - экспериментально измеренная прозрачность объекта при облучении пучком BS1. Используя соотношение (1) для поглощенной энергии в детекторе и спектральное распределение BS1 (рис. 4), определим расчетное значение t^{CALC} [9] массовой толщины объекта из соотношения:

$$T(E_e, \mu(E, Fe) \cdot t^{CALC}) = T_1^{ex}. \quad (8)$$

В качестве T_1^{ex} используем результаты, рассчитанные на основе соотношения (6), в котором для поглощенной энергии из (1) используется экспоненциальный фактор ослабления из соотношения (7b). Для массовых толщин $t_0 = 100, 150$ и 200 g/cm^2 и вложений из свинца в диапазоне $t_{pb} = 0 - 50 \text{ g/cm}^2$ определены значения расчетной массовой толщины t^{CALC} . Отклонения расчетных значений t^{CALC} от t_0 в виде $\delta = (t^{CALC} - t_0)/t_0$ в зависимости от массовой толщины вложения t_{pb} приведены на рис. 5.

Видно, что с увеличением t_0 отклонение δ уменьшается и, например, при $t_0 = 150$ и $t_{pb} = 50 \text{ g/cm}^2$ это отклонение составляет менее 5 %.

Используя экспериментальное значение прозрачности объекта T_2^{ex} для пучка BS2 и расчетное значение массовой толщины объекта t^{CALC} , определяется расчетное значение вложения t_{pb}^{CALC} из соотношения:

$$T[E_e, \mu(E, Fe) \cdot (t^{CALC} - t_{pb}^{CALC}) + \mu(E, Pb) \cdot t_{pb}^{CALC}] = T_2^{ex}. \quad (9)$$

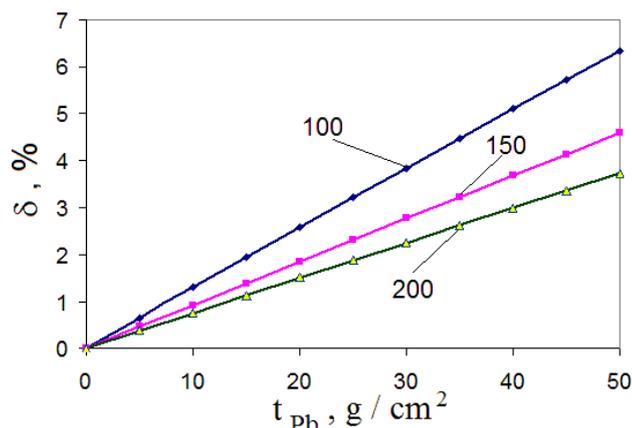


Рис. 5. Отклонение расчетных значений толщины inspected объекта t^{CALC} от реальной толщины t_0 ($\delta = (t^{CALC} - t_0) / t_0$) в зависимости от толщины t_{Pb} вложения из свинца.

Для спектрального состава BS2 (рис. 4) и массовых толщин объекта $t_0 = 100, 150$ и 200 g/cm^2 рассчитанные значения t_{Pb}^{CALC} приведены на рис. 6 как функции толщины исходных вложений t_{Pb} . Для рассмотренных спектров пучков BS1 и BS2 вложение свинца на фоне стальных конструкций определяется достаточно уверенно, и расчетное значение t_{Pb}^{CALC} слабо зависит от массовой толщины объекта t_0 в диапазоне от 100 до 200 g/cm^2 .

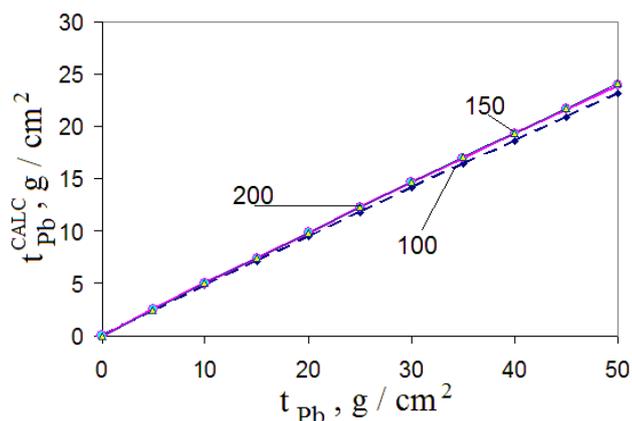


Рис. 6. Расчетные значения толщины вложений t_{Pb}^{CALC} из свинца в зависимости от реальной толщины исходных вложений t_{Pb} .

Выполнено моделирование методом Монте-Карло прохождения фотонов через объект из стали, содержащего вложения из свинца. Геометрическая схема численного эксперимента в пакете MCNP [10] представлена на рис. 7.

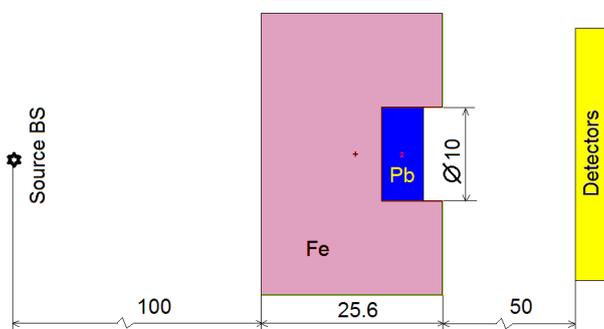


Рис.7. Геометрическая схема прохождения фотонов тормозного излучения BS от точечного источника, выполненная в пакете MCNP.

Рассматривалось прохождение BS от точечного источника, создаваемого электронами с энергиями 4,5 и 9 MeV на конвертерах 1 и 2 (см. выше). Источник размещался на расстоянии 1 м от объекта из стали толщиной $t_0 = 200 \text{ g/cm}^2$ (25,64 см), толщина вложения из свинца составляла $t_{Pb} = 50 \text{ g/cm}^2$ (4,4 см).

Проведено моделирование прохождения BS сквозь слой стали толщиной t_0 и сквозь слой стали t_0-t_{Pb} и вставку из свинца толщиной t_{Pb} , так что общая массовая толщина составляла $t_0 = 200 \text{ g/cm}^2$. Для создания радиографического изображения использована матрица из 3600 детекторов (60×60). Точность расчетов составляла около 2%. Низкоэнергетический пучок BS1 практически не идентифицирует в радиографическом изображении наличие вложения из Pb в отличие от пучка BS2. На рис. 8 приведено радиографическое изображение вложения из Pb на фоне Fe, создаваемое пучком BS2. Отметим проекционное увеличение радиографического изображения при данной геометрии.

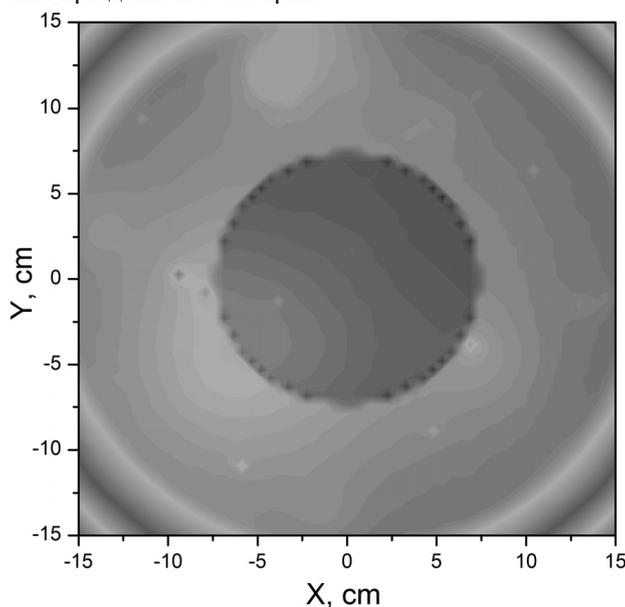


Рис. 8. Радиографическое изображение вложения из Pb на фоне Fe, создаваемое пучком BS2 (9 MeV) при прохождении объекта с толщинами $t_0 = 200 \text{ g/cm}^2$ (25,64 см Fe) и $t_{Pb} = 50 \text{ g/cm}^2$ (4,4 см Pb).

В таблице 2 приведены результаты расчетов отношения прозрачностей объектов из стали, содержащих вложения из свинца ($t_0 = t_{Fe} + t_{Pb} = 150 \text{ g/cm}^2$) к прозрачности объектов из стали ($t_0 = 150 \text{ g/cm}^2$), проведенных в пакете MCNP и в лучевом приближении. Рассматривались толщины вложений из свинца $t_{Pb} = 30 \text{ g/cm}^2$ (2,64 см) и $t_{Pb} = 50 \text{ g/cm}^2$ (4,4 см).

Таблица 2.

Отношения прозрачностей стальных объектов, содержащих вложения из свинца, к прозрачности объектов из стали такой же массовой толщины.

t_{Pb} , g/cm^2	BS1		BS2	
	MCNP $T(t_0)/T(t_0, t_{Pb})$	Лучевое приб. $T(t_0)/T(t_0, t_{Pb})$	MCNP $T(t_0)/T(t_0, t_{Pb})$	Лучевое приб. $T(t_0)/T(t_0, t_{Pb})$
30	0,85	0,853	0,74	0,745
50	0,74	0,769	0,60	0,617

Поскольку точность расчетов в MCNP составляет около 2%, можно сделать вывод о хорошем согласии лучевого приближения с численным моделированием.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Сформулированы требования к характеристикам низкоэнергетических и высокоэнергетических пучков ТИ в методе дуальных энергий, необходимые для эффективной радиографии объектов больших размеров. Показано, что при увеличении массовой толщины объектов диапазон доминирования Комpton-эффекта расширяется, наличие же вложений из тяжелых элементов сужает этот диапазон.

Исследовано влияние толщины t_C конвертеров из Ta на характеристики низкоэнергетического BS. Показано, что при $t_C \geq 2 \text{ g/cm}^2$ содержание фотонов RL в интервале энергий $0,5 \leq E < 3,1$ максимально при энергиях генерирующих электронов $E_e = 4 - 5 \text{ MeV}$. Увеличение t_C приводит к увеличению RL и уменьшению общего выхода фотонов. При $t_C \geq 2 \text{ g/cm}^2$ материал конвертера фактически служит поглотителем фотонов низкой энергии $E < 0,5 \text{ MeV}$.

При генерации высокоэнергетического пучка BS1 электронами с энергией $E_e = 9$ MeV проведено исследование влияния материала и толщины конвертера t_C на выход фотонов с $E > 3,1$ MeV. Показано, что с увеличением t_C в спектре BS1 возрастает доля таких фотонов, а общий выход BS падает. Начиная с толщин $t_C \geq 3$ g/cm², материал конвертера является поглотителем фотонов, энергии которых $E < 0,5$ MeV. Доля высокоэнергетических фотонов в спектре BS1 увеличивается при использовании конвертеров с более высоким Z (Pb по сравнению с Ta).

Показано, что трехслойные конвертеры (Ta+H₂O+Pb) могут эффективно формировать пучки BS для использования в методе дуальных энергий. Предложена методика оценки толщины вложений из тяжелых элементов на маскирующем фоне, как методом Монте-Карло, так и квазианалитическим методом. Показано, что использование трехслойных конвертеров с оптимальными параметрами позволяет выделить вложения из свинца толщиной от 0,44 см до 4,4 см на фоне стальных изделий толщиной до 25,5 см.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Neale W., Rushbrooke J., Ansoorge R. // 1996, US Patent, 5,524,133.
2. Ogorodnikov S., Petrunin V. Processing of interlaced images in 4–10 MeV dual energy customs system for material recognition //Phys. Rev. Special Topics - Accelerators and Beams. – 2002.– Vol.5. – P.104701.
3. Broder D.L. i dr. Rukovodstvo po radiacionnoj zashhite dlja inzhenerov. - T.1. - M.: Atomizdat, 1972. - 424 s.
4. Storm E., Israel H. Photon Cross Section from 0.001 to 100 MeV for Elements 1 through 100, Los Alamos Scientific Laboratory, New Mexico, 1967.
5. Hubbell J.H., Seltzer S.M. // Radiation Physics Division, PML, The National Institute of Standards and Technology(NIST), USA, <http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/>
6. Baro J., Sempau J. at all. PENELOPE: an algorithm for Monte Carlo simulation of the penetration and energy loss of electrons and positrons in matter //Nucl. Instr.& Meth. – 1995. - Vol. B100. - P.31-46.
7. Salvat F., Fernández-Varea J.M., Sempau J. // 2011, PENELOPE-2011. OECD NEA Data Bank/NSC DOC(2011)/5 (OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux), <http://www.oecd-nea.org/dbprog/courses/penelope-2011.pdf>
8. Meissner I., Abs M. at all. //Rad. Phys. Chem. - 2000. - Vol.57. - P. 647-651.
9. Afanas'ev V.D., Pis'meneckij S.A., Rudychev V.G., Rudychev D.V. Primenenie metoda dual'nyh energij dlja diskriminacii tjazhelyh elementov // The Journal of Kharkiv National University, physical series "Nuclei, Particles, Fields". – 2005. - No. 664. – Iss. 2(27). - S. 56-60.
10. MCNP 2.4.0. // 2002, RSICC computer code collection. CCC-715. www.mcnp.ir/admin/imgs/1354175991.C715.PDF

PACS: 29.30.Kv

USE OF INCOHERENT SCATTERING FOR MATRIX EFFECTS CORRECTION IN X-RAY FLUORESCENCE MEASUREMENTS OF Ti, Mn, Fe AND U CONCENTRATIONS IN URANIUM ORES

D.V. Kutnii, A.V. Medvediev, S.A. Vanzha

National science center "Kharkov institute of physics and technology" of NAS of Ukraine

1, Akademicheskaya st., Kharkov, Ukraine, 61108

e-mail: d_kutnii@kipt.kharkov.ua

Received May 3, 2016

The work presents the results of method development for matrix effects correction in X-ray fluorescence measurements of Ti, Mn, Fe and U concentrations in the silicate-type uranium ore samples using wavelength dispersive XRF spectrometer S 8 Tiger (Bruker AXS GmbH, Germany). Comparison of the results obtained using standard software package Spectra Plus of the spectrometer and normalized to intensity of characteristic line of primary radiation, incoherently scattered by sample, was carried out. It is shown that for the investigated elements during X-ray fluorescent measurements of their concentrations, in addition to intensity normalization, it is necessary to use additional analytical correction. The use of this method to calculate the corrected concentrations of TiO_2 , MnO, Fe_2O_3 and U_3O_8 allows to decrease the relative error of measurements up to $< 5\%$ within the range of concentrations 0.1...4 mas. % and up to $\leq 7.5\%$ within the range of concentrations 0.04...0.06 mas. %.

KEY WORDS: X-ray fluorescence, uranium ore, matrix effects, incoherent scattering, absorption edge

ВИКОРИСТАННЯ НЕКОГЕРЕНТНОГО РОЗСИВАННЯ ДЛЯ УРАХУВАННЯ МАТРИЧНИХ ЕФЕКТІВ ПРИ РЕНТГЕНОФЛУОРЕСЦЕНТНОМУ ВИЗНАЧЕННІ ВМІСТУ Ti, Mn, Fe И U В УРАНОВИХ РУДАХ

Д.В. Кутній, О.В. Медведєв, С.О. Ванжа

Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України

вул. Академічна 1, м. Харків, Україна, 61108

У роботі наведені результати розробки способу урахування матричних ефектів при рентгенофлуоресцентному визначенні вмісту Ti, Mn, Fe и U в стандартних зразках складу уранової руди силікатного типу з використанням спектрометра з хвильовою дисперсією S 8 Tiger (Bruker AXS GmbH, Німеччина). Проведено порівняння результатів аналізу, отриманих за допомогою стандартного пакета програм Spectra Plus спектрометра і нормованих на інтенсивність характеристичної лінії первинного випромінювання, некогерентно розсіяного пробою, для урахування матричних ефектів. Показано, що для досліджуваних елементів при рентгенофлуоресцентному визначенні їх вмістів, крім нормування інтенсивності необхідно вводити додаткові аналітичні поправки. Використання розробленого способу для розрахунку уточнених значень вмістів TiO_2 , MnO, Fe_2O_3 и U_3O_8 дозволяє знизити відносну похибку вимірювань до $< 5\%$ в інтервалі вмістів 0,1...4 ваг. % і до $\leq 7,5\%$ в інтервалі вмістів 0,04...0,06 ваг. %.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: рентгенівська флуоресценція, уранова руда, матричні ефекти, некогерентне розсіювання, край поглинання

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ НЕКОГЕРЕНТНОГО РАССЕЯНИЯ ДЛЯ УЧЕТА МАТРИЧНЫХ ЭФФЕКТОВ ПРИ РЕНТГЕНОФЛУОРЕСЦЕНТНОМ ОПРЕДЕЛЕНИИ СОДЕРЖАНИЙ Ti, Mn, Fe И U В УРАНОВЫХ РУДАХ

Д.В. Кутній, А.В. Медведєв, С.А. Ванжа

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт» НАН Украины

ул. Академическая 1, г. Харьков, Украина, 61108

В работе приведены результаты разработки способа учета матричных эффектов при рентгенофлуоресцентном определении содержания Ti, Mn, Fe и U в стандартных образцах состава урановой руды силикатного типа с использованием спектрометра с волновой дисперсией S 8 Tiger (Bruker AXS GmbH, Германия). Проведено сравнение результатов анализа, полученных с помощью стандартного пакета программ Spectra Plus спектрометра и нормированных на интенсивность характеристической линии первичного излучения, некогерентно рассеянного пробой, для учета матричных эффектов. Показано, что для исследуемых элементов при рентгенофлуоресцентном определении их содержания, помимо нормирования интенсивностей необходимо вводить дополнительные аналитические поправки. Использование разработанного способа для расчета уточненных значений содержания TiO_2 , MnO, Fe_2O_3 и U_3O_8 позволяет снизить относительную погрешность измерений до $< 5\%$ в интервале содержания 0,1...4 мас. % и до $\leq 7,5\%$ в интервале содержания 0,04...0,06 мас. %.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: рентгеновская флуоресценция, урановая руда, матричные эффекты, некогерентное рассеяние, край поглощения

Аналитическим сигналом при рентгенофлуоресцентном анализе (РФА) является измеренная скорость счета импульсов, пропорциональная интенсивности рентгеновской линии анализируемого элемента. На интенсивность рентгеновского излучения влияет химический состав и физическое состояние анализируемой пробы. Эти влияния принято называть матричными эффектами, к которым относятся: поглощение и рассеяние рентгеновского излучения; вторичная флуоресценция и т.д. В связи с этим установление функциональной

зависимости между измеренной интенсивностью характеристического излучения и содержанием определяемого элемента в пробе является глобальной проблемой теории РФА [1]. Эту проблему решают различными способами в зависимости от типа и сложности химического состава пробы (матрицы).

При РФА первичное излучение рентгеновской трубки взаимодействует с исследуемым веществом посредством двух различных по физической природе процессов: поглощения и рассеяния. В результате поглощения энергия первичного излучения преобразуется в кинетическую энергию фото- и оже-электронов, а также в энергию вторичного (характеристического) рентгеновского излучения. При рассеянии энергия первичного излучения либо сохраняется (когерентное или релеевское рассеяния), либо претерпевает изменения (некогерентное или комптоновское рассеяние). Рассеянное излучение образует поле вторичного излучения, которое также фиксируется детектирующей системой рентгенофлуоресцентного спектрометра. При РФА используется главным образом характеристическое излучение, рассеянное же является чаще всего помехой, образующей фон в рентгеновском спектре [2].

Для определения интенсивности характеристического излучения (аналитической линии) с учетом матричных эффектов используют два, наиболее распространенных, способа анализа [3]. Если при определении содержания элемента интенсивность его аналитической линии сравнивают с интенсивностью такой же линии, зарегистрированной от независимого излучателя, то принято считать, что анализ выполняют способом внешнего стандарта. Если интенсивность аналитической линии определяемого элемента сравнивают с интенсивностью какой-либо другой линии, зарегистрированной от того же излучателя, то принято считать, что анализ выполняют способом внутреннего стандарта.

Классический способ внутреннего стандарта заключается в том, что в анализируемую пробу добавляют известное количество не содержащегося в ней элемента b , который называют внутренним стандартом или элементом сравнения. После измерения интенсивности спектральных линий определяемого элемента I_a и элемента сравнения I_b содержание C_a первого из них определяют с помощью отношения интенсивностей: $C_a = kC_b \cdot I_a/I_b$, где k – коэффициент, который определяется экспериментально с помощью образцов с известным содержанием элементов a и b .

Расчет содержания C_a по вышеприведенной формуле допустимо проводить, если в анализируемых пробах оно изменяется в небольших пределах. В противном случае лучше использовать аналитический график $I_a/I_b = f(C_a)$, который строят с помощью эталонов.

Способ стандарта-фона относят к способам внутреннего стандарта. В качестве стандартного параметра используют интенсивность рассеянного пробой участка спектра первичного излучения. Аналитическим параметром для определения концентрации служит отношение интенсивности I_a аналитической линии определяемого элемента к интенсивности I_σ рентгеновского фона, зарегистрированного от этой пробы.

Корректируя влияние матрицы, такого же эффекта, как и при использовании внутреннего стандарта, можно достичь измерением интенсивности I_σ^{incoh} характеристической линии первичного излучения, некогерентно рассеянного пробой [4]. Концентрация определяемого элемента a рассчитывается из аналитического графика $I_a/I_\sigma^{incoh} = f(C_a)$. Данный подход является частным случаем способа стандарта-фона.

Результаты одной из первых работ по практическому применению некогерентного рассеяния для учета матричных эффектов приведены в [5]. В качестве анализируемых проб использовались геологические образцы, в которых определяли содержание элементов от Ni ($Z = 28$) до Ag ($Z = 47$). Способ основывался на нахождении массового коэффициента поглощения пробы μ_m с использованием соотношения $I_\sigma^{incoh}(\lambda_C) \sim 1/\mu_m(\lambda_C)$, где λ_C – длина волны комптоновской линии. Содержание анализируемого элемента i в пробе рассчитывали, как: $C_i = \mu_m(\lambda_i) \cdot I_i/k$, где k – коэффициент, определяемый характеристиками рентгенофлуоресцентного спектрометра; λ_i – длина волны характеристической рентгеновской линии анализируемого элемента i .

Интенсивность пика некогерентного рассеяния использовалась для нормирования интенсивности характеристических рентгеновских линий Fe, Cr, Ni, Co, Mn, Zn, Cd, Cu, Hg и Pb в кремниевой матрице в публикации [6]. Показано, что такой подход позволяет снизить погрешность определения содержаний анализируемых элементов с 20 % до 5-6 %. Для анализа содержаний элементов от В ($Z = 5$) до Zr ($Z = 40$) в тяжелых матрицах предпочтительнее использовать соотношение $\ln I_\sigma^{incoh}(\lambda_C) \sim \ln(1/\mu_m(\lambda_C))$, обеспечивающее линейную зависимость интенсивности от массового коэффициента поглощения в широком диапазоне Z [7].

В работе [8] для корректировки матричных эффектов при определении содержаний элементов с $Z > 27$ в базальте предложена нелинейная зависимость между массовым коэффициентом поглощения и атомным номером основного матричного элемента (Z): $\mu_m(\lambda_i) = \beta \cdot (Z_i)^\alpha$, где α и β – константы. Возможность применения данного соотношения обоснована для уточнения интенсивностей K -линий Nb, Zr и Y в базальте.

Большинство из описанных выше способов корректировок основаны на оценках массовых коэффициентов поглощения по измеренным интенсивностям I_σ^{incoh} и имеют один существенный недостаток. Возможность их применения ограничена отсутствием в анализируемых материалах в значительных количествах элементов,

длины волн краев поглощения λ_i^{edge} которых короче длины волны аналитической линии λ_i определяемого элемента. В противном случае может происходить избирательное поглощение первичного излучения и, как следствие, значительное увеличение систематической погрешности при корректировке результатов анализа.

Для решения данной проблемы при определении содержаний Ti, V, Cr и Mn в железных рудах предложено следующее выражение: $C_i/I_i = \alpha/I_{\sigma}^{incoh} - \beta \cdot C_{Fe}$, где α и β – постоянные коэффициенты [9]. В связи с тем, что Fe является одним из основных элементов матрицы и справедливо неравенство $\lambda_i > \lambda_{Fe}^{edge} > \lambda_C$ необходимо учитывать влияние железа на интенсивности Ti, V, Cr и Mn. Показано, что введение поправки на содержание Fe позволяет получить погрешность измерений менее 10 %.

Из приведенного анализа публикаций видно, что существует достаточно большое количество работ, посвященных учету матричных эффектов при РФА с использованием интенсивности излучения некогерентного рассеяния. Однако, разнообразие исследуемых объектов настолько велико, что не может существовать единого универсального способа для внесения соответствующих поправок в интенсивность аналитической линии анализируемого элемента. В данной работе была поставлена цель: разработать способ учета матричных эффектов при рентгенофлуоресцентном определении содержаний Ti, Mn, Fe и U в урановых рудах, основанный на комптоновском рассеянии.

МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЙ

Определение содержаний оксидов TiO_2 , MnO , Fe_2O_3 и U_3O_8 в урановых рудах выполняли на рентгенофлуоресцентном спектрометре с волновой дисперсией S 8 Tiger (Bruker AXS GmbH, Германия). Спектрометр укомплектован рентгеновской трубкой OEG 95LT с Rh-анодом максимальной мощностью 4 кВт и силой тока до 170 мА, набором кристалл-анализаторов, проточной-пропорциональным и сцинтилляционными детекторами, коллиматорами, а также Al и Cu фильтрами различной толщины. Управление спектрометром и обработка спектральных данных осуществляется с помощью пакета программ Spectra Plus, в состав которого входит программное обеспечение для полуколичественного (безстандартного) экспресс-анализа образцов неизвестного состава.

В качестве объектов исследований использовали стандартные образцы состава урановой руды силикатного типа, изготовленные КП «Кировгеология». Для уменьшения поверхностных эффектов (влияния неоднородности поверхности на интенсивность аналитического сигнала) пробы урановых руд прессовали в виде таблеток с помощью пресса лабораторного гидравлического ПЛГ-20, диапазон рабочих усилий от 0 до 200 кН. Прессованные таблетки размещали в стандартную кювету, нижнюю часть которой закрывали майларовой пленкой на основе синтетического полиэфирного волокна толщиной 2,5 мкм. Измерение элементного состава проб проводили в вакууме.

Для каждой исследуемой пробы выполняли набор трех рентгеновских спектров, которые затем обрабатывали (определяли содержания оксидов элементов) с помощью пакета программ Spectra Plus. Результаты элементного анализа проб урановых руд приведены в разделе «РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ» (таблица 1) в виде $\bar{C} \pm \Delta$, где Δ – доверительный интервал, рассчитанный для доверительной вероятности $P = 0,95$.

Относительную погрешность результатов анализа ε определяли как отклонение рассчитанного значения содержания \bar{C} с помощью пакета программ Spectra Plus и путем учета матричных эффектов C_{calc} от C_{decl} (в процентах), где C_{decl} – значение содержания оксидов элементов, приведенные в паспортах на стандартные образцы.

При разработке способа учета матричных эффектов за основу был взят подход, описанный в работе [9], суть которого заключается в следующем. Если λ' – длина волны излучения рентгеновской трубки и λ'' – длина волны характеристического излучения анализируемого элемента с соответствующими массовыми коэффициентами поглощения μ' и μ'' , тогда при отсутствии эффектов вторичной флуоресценции зависимость содержания элемента C_i от интенсивности характеристической линии I_i имеет вид:

$$I_i = K \cdot \frac{C_i}{\frac{\mu'}{\sin \varphi} + \frac{\mu''}{\sin \phi}} = K' \cdot \frac{C_i}{(g \cdot \mu' + \mu'')}, \quad (1)$$

где φ – угол между поверхностью образца и направлением падающего первичного излучения рентгеновской трубки; ϕ – угол между поверхностью образца и направлением флуоресцентного излучения анализируемого элемента; K , K' и g – постоянные коэффициенты.

Если между λ' и λ'' отсутствуют длины волн краев поглощения других элементов, то зависимость массового коэффициента поглощения от λ представляет собой монотонную функцию, приведенную на рис. 1а и отношения μ'/μ'' для различных образцов могут быть представлены как:

$$\frac{\mu'_1}{\mu''_1} = \frac{\mu'_2}{\mu''_2} = \frac{\mu'_3}{\mu''_3} = \dots = h. \quad (2)$$

Тогда с учетом $\mu'' = h \cdot \mu'$, где h – постоянный коэффициент и $\mu'' \propto 1/I_{\sigma}^{incoh}$ для корректирования матричных эффектов в данном случае можно использовать следующее выражение:

$$C_i = \alpha \cdot \frac{I_i}{I_{\sigma}^{incoh}}. \quad (3)$$

В случае присутствия длин волн краев поглощения других элементов в образце между λ' и λ'' (рис. 1 б), выражение (3) не может быть использовано. Для анализа большинства легких элементов в геологических образцах такая длина волны соответствует краю поглощения Fe.

Тем не менее, для зависимости, приведенной на рис. 1 б, справедливо следующее $\mu''_a = h \cdot \mu'_a$, обозначив разницу между μ''_a и μ'' как $\Delta\mu$, которая пропорциональна в данном случае содержанию Fe в образце ($\beta \cdot C_{Fe}$), получаем $\mu'' = h \cdot \mu' - \Delta\mu$. Тогда для учета матричных эффектов в случае присутствия длины волны края поглощения железа между λ' и λ'' следует использовать выражение:

$$\frac{C_i}{I_i} = K \cdot (g\mu' + h\mu'' - \beta \cdot C_{Fe}) = K' \cdot [(g+h) \cdot \mu' - \beta \cdot C_{Fe}] = \frac{\alpha}{I_{\sigma}^{incoh}} - \beta \cdot C_{Fe}. \quad (4)$$

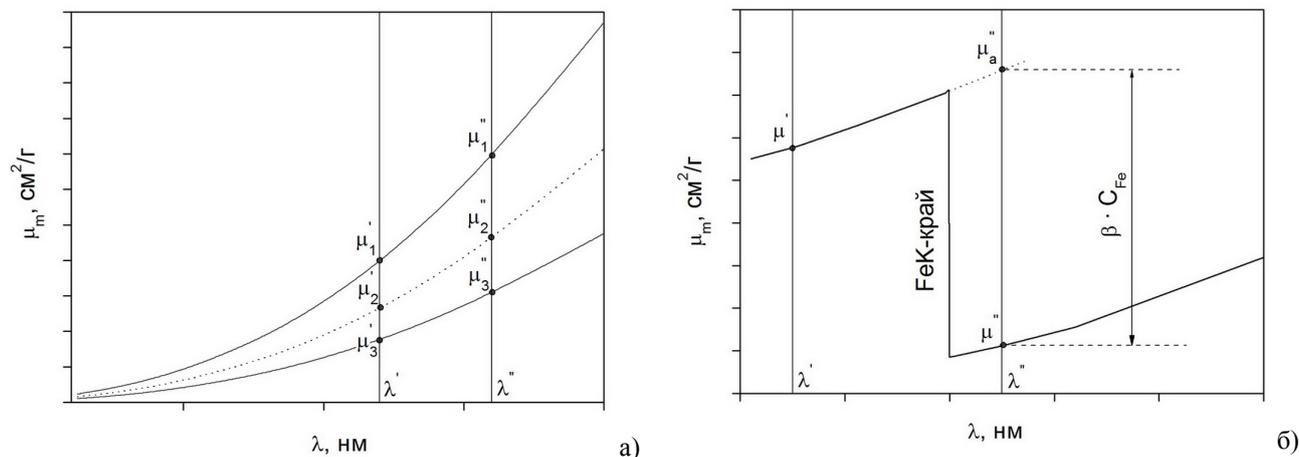


Рис. 1. Зависимость массового коэффициента поглощения образца от длины волны в случае отсутствия длин волн краев поглощения других элементов между λ' и λ'' (а) и присутствия длины волны края поглощения железа (б)

Выражение (4) носит название расширенного уравнения учета матричных эффектов на основе некогерентного рассеяния и может быть использовано для анализа содержаний легких элементов в геологических образцах.

На рис. 2 приведены зависимости массовых коэффициентов поглощения анализируемых элементов в урановых рудах от длины волны и взаимное расположение их краев поглощения.

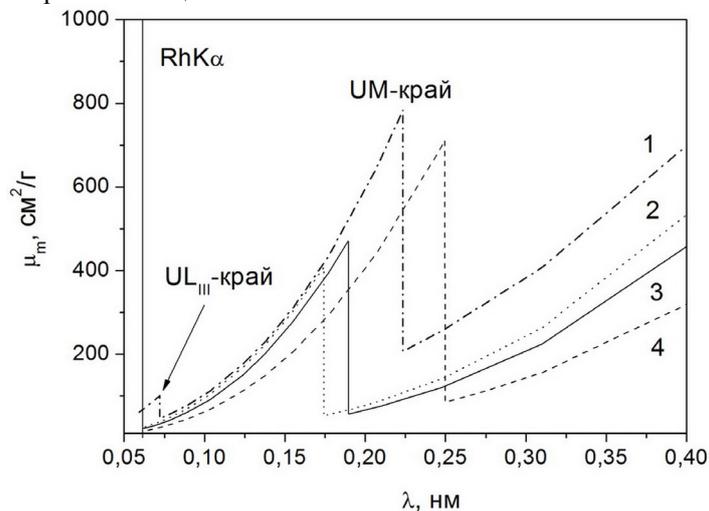


Рис. 2. Зависимости массовых коэффициентов поглощения анализируемых элементов в урановых рудах от длины волны
 1 – уран; 2 – железо; 3 – марганец; 4 – титан

Очевидно, что в исследуемых образцах между λ' , соответствующей длине волны K α -линии Rh и длинами волн характеристического излучения Ti, Mn и Fe присутствуют K-края поглощения соседних элементов, а также L- и M-края поглощения урана. Тогда для корректирования матричных эффектов может быть применено выражение (4) с учетом того, что в данном случае $\Delta\mu$ пропорционально коэффициенту β , умноженному на содержание влияющего элемента. Содержание урана, как элемента, для которого отсутствуют края поглощения между λ' и характеристической линией U α , может быть записано из (4): $C_U = \alpha \cdot I_U / I_{\sigma}^{incoh} (1 + \beta \cdot I_U)$. С целью сравнения результатов корректирования для учета матричных эффектов также использовали выражение (3). Решение уравнений (3) и (4), т.е. нахождение коэффициентов α и β выполняли с помощью линейной регрессии.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

В табл. 1 приведены результаты рентгенофлуоресцентного определения содержаний оксидов TiO₂, MnO, Fe₂O₃ и U₃O₈ в четырех стандартных образцах состава урановой руды (интервал содержаний U₃O₈ от 0,06 до 0,91 мас.%) с помощью пакета программ Spectra Plus, входящего в состав спектрометра S 8 Tiger.

Таблица 1.

Результаты рентгенофлуоресцентного определения TiO₂, MnO, Fe₂O₃ и U₃O₈ в образцах урановой руды с помощью стандартного пакета программ Spectra Plus

Образец	TiO ₂			MnO		
	C_{decl} , мас.%	$\bar{C} \pm \Delta$, мас.%	ε , %	C_{decl} , мас.%	$\bar{C} \pm \Delta$, мас.%	ε , %
УР 47 С	0,280	0,249±0,023	11,190	0,050	0,046±0,002	7,867
УР 114 С	0,330	0,255±0,019	22,727	0,040	0,042±0,001	4,750
УР 240 С	0,390	0,350±0,009	10,256	0,060	0,058±0,004	3,389
УР 768 С	0,360	0,290±0,025	19,444	0,050	0,050±0,004	0,000
Образец	Fe ₂ O ₃			U ₃ O ₈		
	C_{decl} , мас.%	$\bar{C} \pm \Delta$, мас.%	ε , %	C_{decl} , мас.%	$\bar{C} \pm \Delta$, мас.%	ε , %
УР 47 С	3,430	3,325±0,138	3,052	0,060	0,053±0,001	11,000
УР 114 С	3,860	3,397±0,016	11,995	0,130	0,122±0,003	5,872
УР 240 С	4,270	4,225±0,101	1,046	0,280	0,251±0,003	10,429
УР 768 С	3,960	3,691±0,178	6,801	0,910	0,712±0,042	21,791

Несмотря на то, что программное обеспечение Spectra Plus учитывает матричные эффекты с помощью модели поправок по концентрации с теоретическими α -коэффициентами [10], не всегда удается рассчитать содержание анализируемого элемента с удовлетворительной погрешностью. Проблема при определении содержания U₃O₈, по видимому, связана с тем, что первоначально программное обеспечение спектрометра S 8 Tiger калибрует измеренные рентгеновские пики элементов (имеется в виду, что программное обеспечение Spectra Plus рассчитывает поправку на интенсивность измеренной аналитической линии с учетом эффектов поглощения и рассеяния) с помощью собственной библиотеки аналитических линий, в которой отсутствуют данные для урана, поэтому для калибровки используется линия SrK α (14,164 кэВ), наиболее близкая к U α -линии (13,613 кэВ). Исходя из данных, приведенных на рис. 2, между длиной волны характеристического излучения Ti и первичного излучения рентгеновской трубки существуют четыре длины волны краев поглощения Mn, Fe и U, поэтому высока вероятность избирательного поглощения первичного излучения этими элементами и, как следствие, возникновения систематической недооценки содержания TiO₂.

Исходя из взаимного расположения краев поглощения Ti, Mn, Fe и U, приведенных на рис. 2, для каждого из исследуемых элементов находили влияющие, т.е. такие, края поглощения которых расположены между λ' и характеристической линией анализируемого элемента. Так, для Ti влияющими элементами являются Mn, Fe и U; для Mn – Fe и U; для Fe – U; для U влияющие элементы отсутствуют. Исходя из того, что коэффициенты регрессии являются количественной характеристикой силы влияния независимой переменной (x) на зависимую (y), выраженной в единицах среднеквадратичного отклонения, степень влияния элементов оценивали по величине коэффициента β . В табл. 2 приведены результаты регрессионного анализа, SD – стандартная ошибка, $R2$ – коэффициент корреляции.

Видно, что наибольшая степень влияния для учета матричных эффектов при определении содержания TiO₂ наблюдается у марганца, а для MnO и Fe₂O₃ у урана. На основе выполненных оценок и с использованием полученных коэффициентов регрессии рассчитывали уточненные содержания TiO₂, MnO, Fe₂O₃ и U₃O₈, откорректированные на матричные эффекты. Результаты расчетов приведены в табл. 3.

Таблица 2.

Коэффициенты регрессии и регрессионная статистика для Ti, Mn и Fe

Анализируемый элемент	Влияющий элемент	Результаты регрессионного анализа			
		α	β	SD	R2
Ti	Mn	10,3787	0,2613	0,0212	0,9319
	Fe	5,3356	0,0031	0,0256	0,9009
	U	7,4265	0,0003	0,0271	0,8886
Mn	Fe	1,2171	0,0012	0,0071	0,7515
	U	2,7188	0,0033	0,0047	0,8881
Fe	U	1,3048	0,0007	0,2309	0,8525

Таблица 3.

Результаты расчета уточненных содержаний TiO_2 , MnO, Fe_2O_3 и U_3O_8 в образцах урановой руды с помощью уравнений (3) и (4)

Образец	TiO_2				
	C_{decl} , мас.%	$C_{Ti} = \alpha \cdot I_{Ti} / I_{\sigma}^{incoh}$		$C_{Ti} = \alpha \cdot I_{Ti} / I_{\sigma}^{incoh} - \beta \cdot C_{Mn} \cdot I_{Ti}$	
		C_{calc} , мас.%	ε , %	C_{calc} , мас.%	ε , %
УР 47 С	0,280	0,298	6,429	0,289	3,233
УР 114 С	0,330	0,310	6,061	0,315	4,438
УР 240 С	0,390	0,392	0,513	0,384	1,405
УР 768 С	0,360	0,360	0,000	0,371	3,076
Образец	MnO				
	C_{decl} , мас.%	$C_{Mn} = \alpha \cdot I_{Mn} / I_{\sigma}^{incoh}$		$C_{Mn} = \alpha \cdot I_{Mn} / I_{\sigma}^{incoh} - \beta \cdot C_U \cdot I_{Mn}$	
		C_{calc} , мас.%	ε , %	C_{calc} , мас.%	ε , %
УР 47 С	0,050	0,045	10,000	0,047	6,000
УР 114 С	0,040	0,043	7,500	0,043	7,500
УР 240 С	0,060	0,058	3,333	0,061	1,667
УР 768 С	0,050	0,054	8,000	0,050	0,000
Образец	Fe_2O_3				
	C_{decl} , мас.%	$C_{Fe} = \alpha \cdot I_{Fe} / I_{\sigma}^{incoh}$		$C_{Fe} = \alpha \cdot I_{Fe} / I_{\sigma}^{incoh} - \beta \cdot C_U \cdot I_{Fe}$	
		C_{calc} , мас.%	ε , %	C_{calc} , мас.%	ε , %
УР 47 С	3,430	3,565	3,936	3,577	4,286
УР 114 С	3,860	3,670	4,922	3,683	4,585
УР 240 С	4,270	4,226	1,030	4,292	0,515
УР 768 С	3,960	4,060	2,525	3,968	0,202
Образец	U_3O_8				
	C_{decl} , мас.%	$C_U = \alpha \cdot I_U / I_{\sigma}^{incoh}$		$C_U = \alpha \cdot I_U / I_{\sigma}^{incoh} (1 + \beta \cdot I_U)$	
		C_{calc} , мас.%	ε , %	C_{calc} , мас.%	ε , %
УР 47 С	0,060	0,048	20,000	0,060	0,000
УР 114 С	0,130	0,135	3,846	0,129	0,769
УР 240 С	0,280	0,291	3,929	0,270	3,571
УР 768 С	0,910	0,906	0,440	0,971	6,703

Несмотря на то, что влияние первой независимой переменной (I_i / I_{σ}^{incoh}) на C_i в уравнении (4) значительно превосходит влияние второй ($C_j \cdot I_i$), т.е. $\alpha \gg \beta$, использование расширенного уравнения учета матричных эффектов позволяет дополнительно снизить погрешность измерений при РФА и является более предпочтительным по сравнению со стандартной корректировкой, основанной на уравнении (3).

На рис. 3 приведены линейные интерполяции функцией вида $y = a \cdot x + b$ зависимостей паспортных содержаний оксидов TiO_2 , MnO, Fe_2O_3 и U_3O_8 от рассчитанных с помощью стандартного пакета программ Spectra Plus и с использованием уравнения (4).

Для зависимостей, полученных с использованием расширенного уравнения учета матричных эффектов, характерно: $a \rightarrow 1$ и $b \rightarrow 0$, т.е. наблюдается хорошая корреляция экспериментальных и паспортных данных. Отметим, что максимальная погрешность 7,5 % была получена при определении достаточно низких для РФА концентраций MnO, содержания остальных оксидов были рассчитаны с относительной погрешностью менее 5 %.

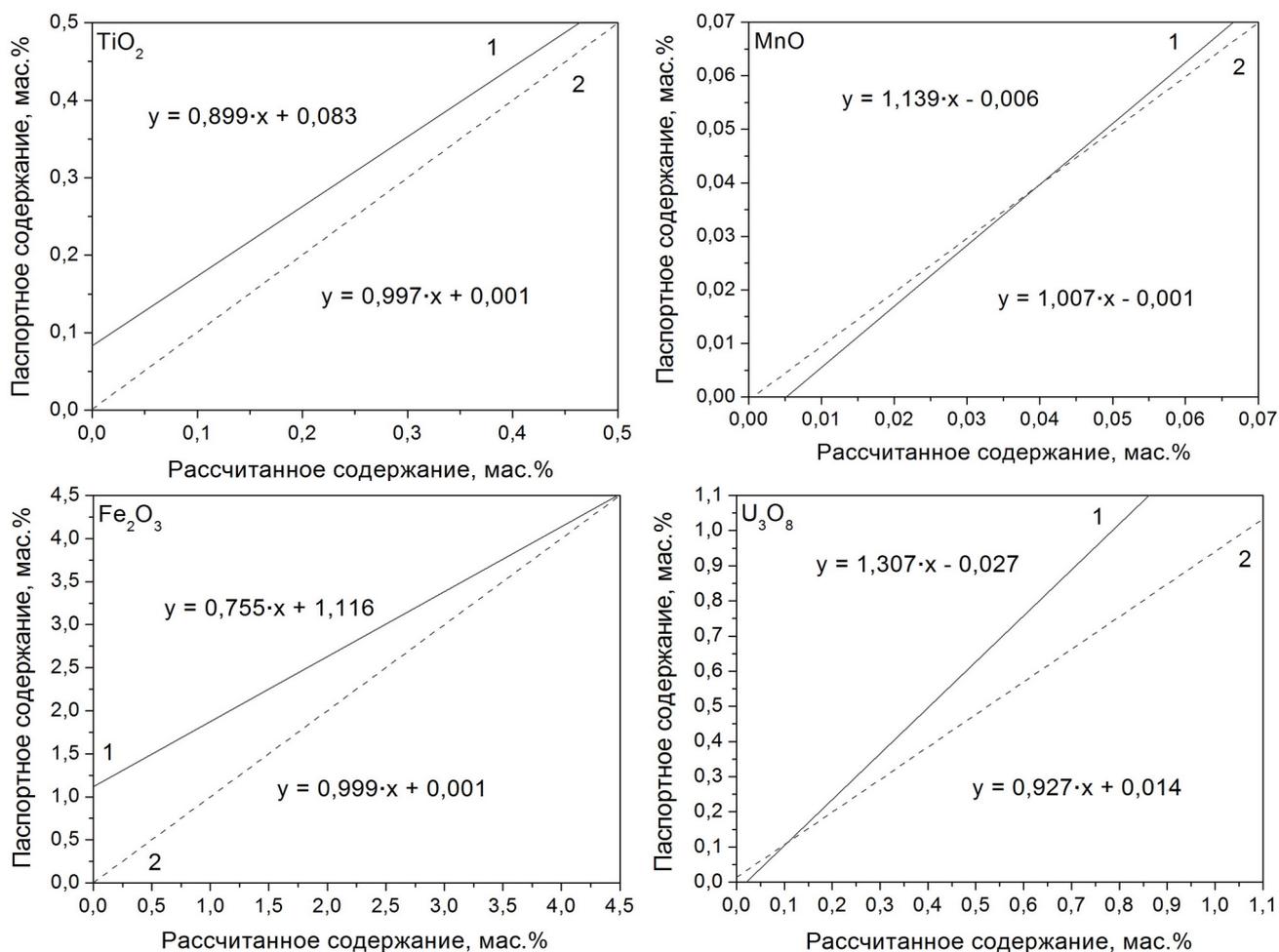


Рис. 3. Линейные интерполяции зависимостей содержания оксидов TiO₂, MnO, Fe₂O₃ и U₃O₈, приведенных в паспортах на образцы от рассчитанных
1 – с помощью стандартного пакета программ Spectra Plus; 2 – с использованием расширенного уравнения учета матричных эффектов

ВЫВОДЫ

Разработан способ использования некогерентного рассеяния для учета матричных эффектов при рентгенофлуоресцентном определении содержаний Ti, Mn, Fe и U в урановых рудах.

Показано, что большинство из существующих корректировок матричных эффектов, основанных на использовании интенсивности характеристической линии первичного излучения, некогерентно рассеянного пробой, не всегда могут быть применены для образцов, в которых присутствуют примеси, длины волн краев поглощения которых короче длины волны аналитической линии определяемого элемента. Одним из решений проблемы является введение дополнительных аналитических поправок на содержание таких примесей.

Для оценки степени взаимного влияния элементов при учете матричных эффектов предложено использовать регрессионный анализ. Расчет коэффициентов регрессии позволяет идентифицировать элементы, влиянием которых можно пренебречь и, таким образом, использовать в расширенном уравнении учета матричных эффектов значение содержания влияющего элемента с максимальным коэффициентом β .

Использование разработанного способа для расчета уточненных значений содержаний TiO₂, MnO, Fe₂O₃ и U₃O₈ позволяет снизить относительную погрешность измерений до $< 5\%$ в интервале содержаний 0,1...4 мас. % и до $\leq 7,5\%$ в интервале содержаний 0,04...0,06 мас. %.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Afonin V.P., Gunicheva T.N., Piskunova L.F. Rentgenofluorescentnyj silikatnyj analiz. – Novosibirsk: Nauka, 1984. – 227 s.
2. Losev N.F. Kolichestvennyj rentgenospektral'nyj fluorescentnyj analiz. – Moskva: Nauka, 1969. – 338 s.
3. Losev N.F., Smagunova A.N. Osnovy rentgenospektral'nogo fluorescentnogo analiza. – Moskva: Himija, 1982. – 208 s.
4. Jerhardt H. Rentgenofluorescentnyj analiz: per. s nem. – Moskva: Metallurgija, 1986. – 256 s.
5. Reynolds R.C. Matrix correction in trace element analysis by X-ray fluorescence: Estimation of mass absorption coefficient by Compton scattering // The American Mineralogist. – 1963. – Vol. 48. – P. 1133-1143.

6. Luhrmann M., Wegener F., Kettrup A. Application of a method for matrix correction using Compton-scattering for quantitative determination of metals in silica by wavelength dispersive X-ray fluorescence spectroscopy // *Anal. Chem.* – 1986. – Vol. 323. – P. 132-134.
7. Sheng X.B. A power function relation between mass attenuation coefficient and Rh $K\alpha$ Compton peak intensity and its application to XRF analysis // *X-ray Spectrometry.* – 1997. – Vol. 26. – P. 23-27.
8. Analysis of trace elements in basalts by shipboard X-ray fluorescence spectrometry: Initial report of the deep sea drilling project. – Washington: U.S. Govt. Printing Office; No. 82, 1985. – 10 p.
9. Liangyuan F., Huilan B., Ruoling L., Yawen Zh. XRF determination of 17 trace elements in geological samples using an extended Compton scattering correction procedure // *Chinese Journal of Geochemistry.* – 1990. – Vol. 9(1). – P. 77-85.
10. Criss J.W., Birks L.S. Calculation methods for fluorescent X-ray spectrometry // *Anal. Chem.* – 1968. – Vol. 40(7). – P. 1080-1086.

PACS: 61.50.Ah, 64.10.+h

EFFECT OF CARBON ON PHYSICAL AND STRUCTURAL PROPERTIES OF FeB IRON MONOBORIDE

N.Yu. Filonenko¹, A.N. Galdina²

¹State Establishment "Dnipropetrovsk Medical Academy of Health Ministry of Ukraine"

9 Dzerzhinsky Str., Dnipropetrovsk, 49044, Ukraine

e-mail: natph2016@gmail.com

²Oles Honchar Dnipropetrovsk National University

72 Gagarin Ave., Dnipropetrovsk, 49010, Ukraine

e-mail: alexandragaldina@gmail.com

Received April 29, 2016

In this paper we study effect of carbon on structural and physical properties of FeB iron monoboride in Fe-B system alloys with carbon content of 0,05-0,90% (wt.) and boron content of 9,0-15,0% (wt.), the rest is iron. To determine the physical properties of alloys we use microstructure analysis, X-ray microanalysis and X-ray structural analysis. Carbon doping of FeB iron monoboride leads to a feeble lattice strain and effects on the physical characteristics of boride. Using the quasi-chemical method we estimate the temperature dependence of the boride free energy and carbon solubility limit in FeB monoboride. Carbon can substitute up to 4% of boron atoms in FeB phase depending on the temperature. At high temperatures the carbon solubility in this phase increases. The obtained estimated data is in good agreement with experiment.

KEYWORDS: FeB iron monoboride, Fe-B alloys, free energy of the phase, carbon solubility

ВЛИЯНИЕ УГЛЕРОДА НА ФИЗИЧЕСКИЕ И СТРУКТУРНЫЕ СВОЙСТВА МОНОБОРИДА FeB

Н.Ю. Филоненко¹, А.Н. Галдина²

¹ГУ «Днепропетровская государственная медицинская академия МОЗ Украины»,

49044, Украина, г. Днепропетровск, ул. Дзержинского, 9

²Днепропетровский национальный университет имени Олеса Гончара,

49010, Украина, г. Днепропетровск, просп. Гагарина, 72

В работе исследовано влияние углерода на структурные и физические свойства моноборида железа FeB в сплавах системы Fe-B с содержанием углерода 0,05-0,90% (масс.) и бора 9,0-15,0% (масс.), остальное – железо. Для определения физических свойств сплавов использовали микроструктурный, микрорентгеноспектральный и рентгеноструктурный анализы. Легирование углеродом моноборида железа FeB приводит к незначительной деформации кристаллической решетки и влияет на физические характеристики борида. В работе с использованием квазихимического метода была получена зависимость свободной энергии борида от температуры и определен предел растворимости углерода в монобориде FeB. Углерод может замещать до 4% атомов бора в фазе FeB в зависимости от температуры. При высоких температурах растворимость углерода в данной фазе возрастает. Полученные в работе расчетные данные хорошо согласуются с экспериментальными данными.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: моноборид железа FeB, сплавы Fe-B, свободная энергия фазы, растворимость углерода

ВПЛИВ КАРБОНУ НА ФІЗИЧНІ ТА СТРУКТУРНІ ВЛАСТИВОСТІ МОНОБОРИДУ FeB

Н.Ю. Філоненко¹, О.М. Галдіна²

¹ДЗ «Дніпропетровська державна медична академія МОЗ України»,

49044, Україна, м. Дніпропетровськ, вул. Дзержинського, 9

²Дніпропетровський національний університет імені Олеса Гончара,

49010, Україна, м. Дніпропетровськ, просп. Гагарина, 72

У роботі досліджено вплив карбону на структурні та фізичні властивості монобориду заліза FeB у сплавах системи Fe-B із вмістом карбону 0,05-0,90% (мас.) і бору 9,0-15,0% (мас.), інше – залізо. Для визначення фізичних властивостей сплавів використовували микроструктурний, микрорентгеноспектральний та рентгеноструктурний аналізи. Легування карбоном монобориду заліза FeB призводить до незначної деформації кристалічної решітки та впливає на фізичні характеристики бориду. В роботі з застосуванням квазіхімічного методу отримали залежність вільної енергії бориду від температури та визначили межу розчинності карбону в монобориді FeB. Карбон може замінювати до 4% атомів бору в фазі FeB в залежності від температури. При високих температурах розчинність карбону в даній фазі зростає. Отримані в роботі розрахункові дані добре узгоджуються з експериментальними даними.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: моноборид заліза FeB, сплави Fe-B, вільна енергія фазы, розчинність карбону

В сплавах на основі заліза, що містять понад 8,86 % (мас.) бору, або на поверхні сплавів після борування відбувається утворення монобориду FeB як структурної одиниці. У сплавах системи Fe-B при температурі 1823 К з рідини утворюється моноборид заліза FeB з масовим вмістом бору 16,25 % (мас.) [1-2]. Автори робіт [3-5] роблять припущення, що у сплавах системи Fe-B утворюється моноборид заліза FeB, який може існувати у двох модифікаціях: високотемпературній β -FeB та низькотемпературній α -FeB. Але дослідження сплавів системи Fe-B з чистих матеріалів показали на відсутність поліморфного перетворення [2,6]. Крім того, автори цих роботи вказують, що великий вплив на формування фази FeB мають домішки карбону, алюмінію та ін.

Дослідження К. І. Портного та ін. [6] свідчать про існування лише однієї модифікації монобориду заліза з структурою B27. Відомо, що карбон має малу розчинність в бориді заліза, але межа розчинності карбону в монобориді не виявлена [2, 8].

Метою даної роботи було дослідити вплив карбону на фізичні та структурні властивості монобориду FeB.

МАТЕРІАЛИ ТА МЕТОДИКА ДОСЛІДЖЕНЬ

Дослідження проводили на зразках із вмістом карбону 0,05-0,90 % (мас.) і бору 9,0-12,0 % (мас.), інше – залізо. Для отримання сплавів систем Fe-B використовували шихту такого складу: залізо карбонільне (з вмістом заліза 99,95 % (мас.)), аморфний бор (з вмістом бору 97,5,0 % (мас.)), графіт електродний ЕУО (з вмістом вуглецю 99,96 % (мас.)). Виплавку зразків проводили в печі Тамана з графітовим нагрівачем в алундових тиглях в атмосфері аргону. Швидкість охолодження сплавів становила 10 К/с. Для визначення хімічного складу сплаву використовували хімічний та спектральний аналіз [9]. Мікротвердість фаз вимірювали на приборі ПМТ-3 (згідно з ГОСТ 9460–76).

Фазовий склад сплавів визначали методом мікрорентгеноспектрального аналізу на мікроскопі JSM–6490 зі скануючою приставкою ASID-4D й енергодисперсійного рентгенівського мікроаналізатора «Link Systems 860» із програмним забезпеченням, а також за допомогою оптичного мікроскопа «Неофот-21». Рентгеноструктурний аналіз здійснювали на дифрактометрі ДРОН-3 у монохроматизованому Fe-K α . Теоретичний розрахунок дифрактограм фаз виконували з використанням програми «CaRIne v. 3.1».

РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

У сплавах системи Fe-B з вмістом бору в інтервалі 9,0-15% (мас.) спостерігається двофазна структура, яка являє собою первинні дендрити FeB, що містяться у матриці фази Fe $_2$ B (рис. 1а). Легування сплавів системи Fe-B карбоном до 0,2% (мас.) практично не призводить до зміни структури сплаву.

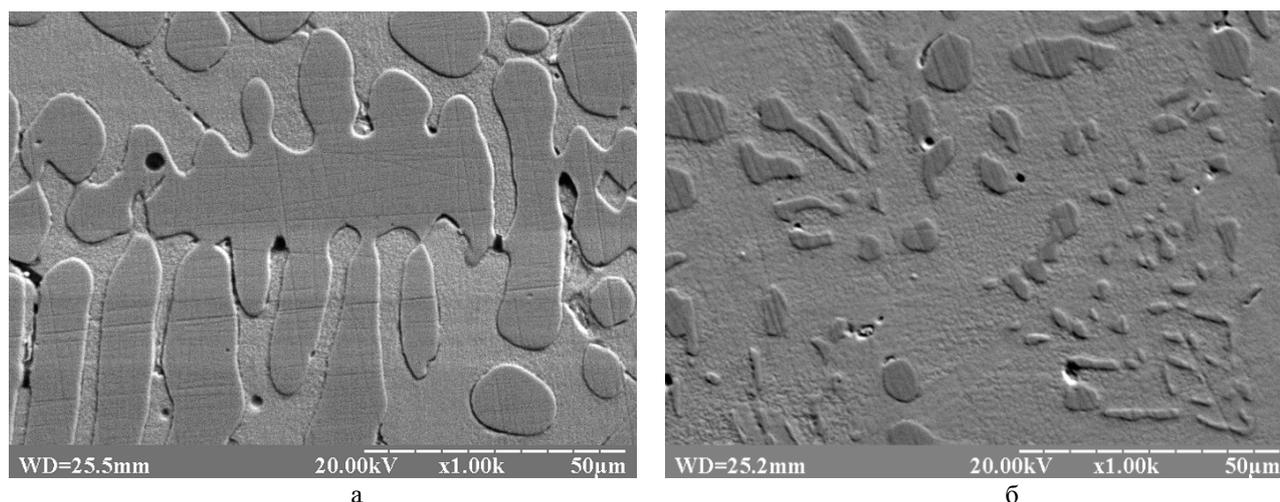


Рис. 1. Мікроструктура у вторинних електронах сплавів з вмістом бору 11,0% (а), бору 11,0% та карбону 0,4% (мас.) (б)

При вмісті карбону у інтервалі 0,2-0,7% (мас.) у сплаві на основі заліза, що містить бор понад 9,0% (мас.) спостерігали евтектику FeB + Fe $_2$ B із стержневою морфологією (рис. 1б). Збільшення вмісту карбону більше ніж 0,9% (мас.) призводить до утворення евтектики, яка складається з графіту та бориду Fe $_2$ B [10].

Таблиця 1

Параметри кристалічної ґратки фази FeB

Вміст, % (мас.)		FeB _{експер}			FeB _{табл.}			Джерело
Бору	Карбону	a, Å	b, Å	c, Å	a, Å	b, Å	c, Å	
12,0	-	4,05695± 0,0025	5,0683± 0,002	3,02718± 0,002	4,057	5,502	2,952	[11]
12,0	0,2	4,05728± 0,0025	5,0353± 0,002	3,02732± 0,002	4,061	5,506	2,952	[12]
12,0	0,6	4,05529± 0,0025	5,1511± 0,002	3,05321± 0,002	4,053	5,495	2,946	[13]

Збільшення вмісту карбону в сплаві Fe-B супроводжується незначним збільшенням параметру решітки монобориду FeB та густини дислокацій (табл. 1,2). Слід зазначити, що при вмісті карбону 0,2 % (мас.) спостерігали зменшення ступеня мікронапружень та густини дислокацій в фазі.

Таблиця 2

Залежність розміру кристалітів, густини дислокацій, ступеня мікронапружень у монобориді FeB від вмісту карбону в сплаві Fe-B

Вміст, % (мас.)		Розмір кристалітів L, Å	Ступень мікронапружень M	Густина дислокацій $\rho \times 10^{10}$, см ⁻²
Бору	Карбону			
12,0	-	1122	$1,01 \cdot 10^{-3}$	7,64
12,0	0,2	1114	$6,12 \cdot 10^{-5}$	5,79
12,0	0,6	920	$5,26 \cdot 10^{-4}$	7,1

Мікрорентгеноспектральний аналіз показав, що в бориді FeB масовий вміст бору становить 16,00-15,65%, а карбону 0,2-0,6% (мас.), інше – залізо.

Таблиця 3

Мікротвердості та масовий склад бориду FeB

Вміст у сплаві, % (мас.)		Мікротвердості Нц, ГПа	Вміст бору в фазі FeB, % (мас.)	Вміст карбону фазі FeB, % (мас.)
Бору	Карбону			
12	-	20,23	16,25	-
12	0,2	20,59	16	0,18
12	0,4	21,03	15,93	0,27
12	0,6	21,32	15,66	0,51

Аналіз отриманих результатів дозволяє зробити припущення, що можливе заміщення атомів бору атомами карбону в кристалічній решітці бориду FeB. Крім того, експериментально визначений вміст карбону в фазі 0,2-0,6% (мас.). Моноборид заліза FeB має ділянку гомогенності, а при високих температурах розчинність карбону вища, ніж при низьких [1].

Структура монобориду FeB має ромбічну елементарну комірку, просторову групу $D_{2h}^{16} - Pbnm$ з 4 атомами в елементарній комірці (структурний тип B27). Решітка монобориду має зигзагоподібні ланцюги із атомів бору. В структурі монобориду існують канали в напрямках [001] та [100], в яких відсутні атоми бору [14].

За допомогою програми «CaRIne v. 3.1» було побудовано кристалічну структуру та теоретичні лінії даної фази на дифрактограмі. Отримані криві на дифрактограмі співпадають з дифрактограмою ASTM.

Для отримання розрахункових результатів межі розчинності атомів карбону в решітці монобориду FeB було застосовано квазіхімічний метод [15]. Розташування атомів бору в решітці бориду FeB умовно можна розділити на дві підрешітки. Перша підрешітка – розташований в центрі тригональної призми атом бору, який має шість найближчих атомів заліза в решітці фази FeB, розташованих на відстані 2,14 Å, а друга – два найближчі атоми бору на відстані 1,77 Å.

Взаємодію атомів Fe-Fe, Fe-B, Fe-C можна врахувати наступним чином: енергії взаємодії пар атомів v_{FeB} , v_{FeC} , v_{BB} , v_{CB} , v_{CC} . Для числових значень енергії взаємодії пар атомів використовували результати, наведені в роботі [15].

Вільну енергію монобориду FeB можна визначити за формулою

$$F = E - kT \ln W,$$

де E – внутрішня енергія фази FeB, W – термодинамічна вірогідність розміщення атомів у вузлах кристалічної решітки монобориду, $k = 1,38 \cdot 10^{-23}$ Дж/К – стала Больцмана, T – абсолютна температура [16].

Таким чином, енергію фази FeB визначаємо як

$$F = - \sum_{i=1}^6 (N_{Fe} N_B v_{FeB} + N_{Fe} N_C v_{FeC}) - \sum_{i=1}^2 (N_B N_B v_{BB} + N_C N_B v_{CB} + N_C N_C v_{CC}) - kT(N(\ln N - 1) - N_B(\ln N_B - 1) - N_C(N_C - 1) - 1) - (N - N_B - N_C)(\ln(N - N_B - N_C - 1)),$$

де $N_{Fe}^{(1)}$ – число атомів заліза в першій підрешітці, N – загальна кількість атомів бору та карбону разом, $N_B^{(2)}$ та $N_C^{(2)}$ – число атомів бору та карбону в другій підрешітці, відповідно.

Для розрахунку розчинності карбону в монобориді необхідно знайти розв’язок системи рівнянь:

$$\frac{\partial F}{\partial N_B} = 0 \text{ та } \frac{\partial F}{\partial N_C} = 0.$$

$$\frac{\partial F}{\partial N_B} = -\sum_{i=1}^6 N_{Fe} \nu_{FeB} - \sum_{i=1}^2 (2N_B \nu_{BB} + N_C \nu_{CB}) - kT(-\ln N_B - \ln(N - N_B - N_C - 1)) = 0,$$

$$\frac{\partial F}{\partial N_C} = -\sum_{i=1}^6 N_{Fe} \nu_{FeC} - \sum_{i=1}^2 (N_B \nu_{CB} + 2N_C \nu_{CC}) - kT(-\ln N_C - \ln(N - N_B - N_C - 1)) = 0.$$

Система рівнянь (1) трансцендентна. Зазвичай розв’язок таких рівнянь можна отримати графічно або чисельно. Але в рамках даної задачі доцільно розглянути асимптотичний розв’язок рівнянь. Для цього представимо логарифм, що входить до кожного з рівнянь системи (1) у вигляді ряду Тейлора (це припустимо за умовами його збіжності):

$$\frac{\partial F}{\partial N_B} = -\sum_{i=1}^6 N_{Fe} \nu_{FeB} - \sum_{i=1}^2 (2N_B \nu_{BB} + N_C \nu_{CB}) - kT \left(\sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (N_B^{(2)} - 1)^n}{n} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (N - N_B - N_C - 1)^n}{n} \right) = 0,$$

$$\frac{\partial F}{\partial N_C} = -\sum_{i=1}^6 N_{Fe} \nu_{FeC} - \sum_{i=1}^2 (N_B \nu_{CB} + 2N_C \nu_{CC}) - kT \left(\sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (N_B^{(2)} - 1)^n}{n} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (N - N_B - N_C - 1)^n}{n} \right) = 0.$$

Для отримання асимптотичної оцінки розв’язку системи (2) достатньо розглянути два перші члени розвинення логарифмів.

Результати розв’язку рівнянь показано на рис. 2. При збільшенні температури вміст бору в монобориді FeB зменшується, а карбону збільшується (рис. 2).

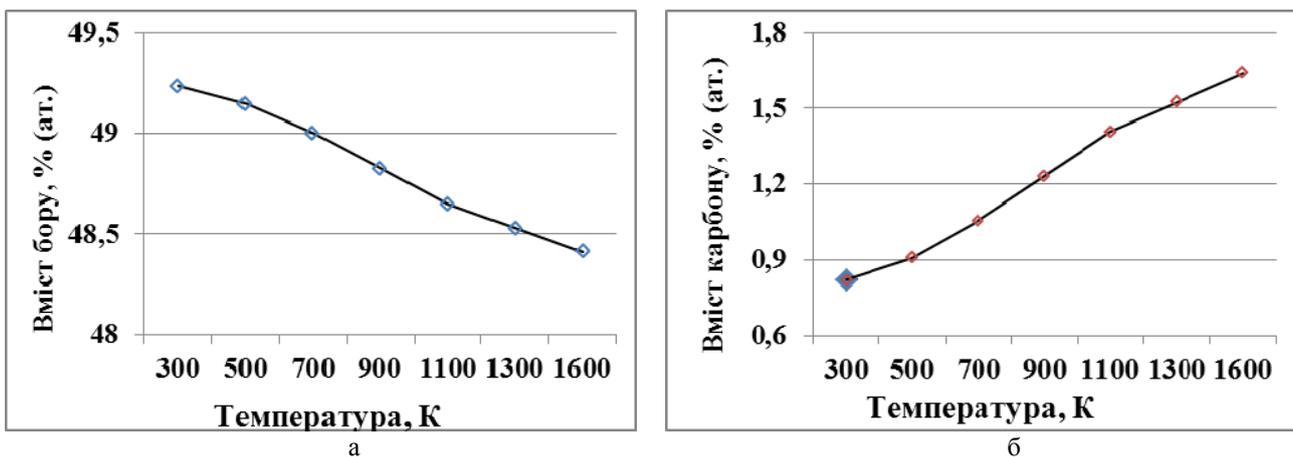


Рис. 2. Залежність від температури вмісту бору (а), карбону (б)

Аналіз отриманих результатів дозволив визначити розчинність карбону в монобориді FeB, а саме: встановлено, що карбон може заміщати до 4 % атомів бору в залежності від температури, що добре узгоджується з експериментальними даними. При високих температурах розчинність карбону в даній фазі зростає.

ВИСНОВКИ

У роботі досліджено вплив карбону на структурні та фізичні властивості монобориду заліза FeB у сплавах системи Fe-B з масовим вмістом карбону 0,05-0,80% і бору 9,0-15,0% , інше – залізо. Слід зазначити, що легування карбоном бориду FeB призводить до деформації кристалічної решітки та впливає на фізичні

характеристики бориду. За допомогою квазіхімічного методу отримано вільну енергію монобориду FeB та визначено вміст в цій фазі карбону. Виявлено, що карбон може заміщати до 4% атомів бору в фазі FeB в залежності від температури. При високих температурах розчинність карбону в даній фазі зростає. Отримані в роботі розрахункові дані добре узгоджуються з експериментом.

REFERENCES

1. Lyakishev N.P., Pliner Yu.L., Lappo S.I. Borsoderzhaschiye stali i splavy. – Moscow: Metallurgiya, 1986. – 191 p.
2. Samsonov G.V., Serebryakova T.I., Neronov V.A. Boridy. – Moscow: Atomizdat, 1999. – 220 p.
3. DeYoung D.B. and Barnes R.G. A Mössbauer effect study of ^{57}Fe in transition metal monoborides // *J. Chem. Phys.* – 1975. – Vol. 62. – P. 1726-1739.
4. Rades S., Kornowski A., Weller H., Albert B. Wet-Chemical Synthesis of Nanoscale Iron Boride, XAFS Analysis and Crystallisation to $\alpha\text{-FeB}$ // *Chem. Phys. Chem.* – 2011. – Vol. 12. – P. 1756-1760.
5. Barinov V.A., Dorofeev G.A., Ovechkin L.V., Elsukov E.P., Ermakov A.E. Structure and magnetic properties of the $\alpha\text{-FeB}$ phase obtained by mechanical working // *Physica status solidi (a)*. – 1991. – Vol. 123. – P. 527-534.
6. Portnoy K.I., Levinskaya M.Kh., Romashov V.M. Diagramma sostoyaniya sistemy zhelezo-bor // *Poroshkovaya metallurgiya (Powder metallurgy)*. – 1969. – Issue 8 (80). – P. 66-69.
7. Pomelnikova A.S., Shipko M.N., Stepovich M.A. Osobennosti strukturnykh prevrascheniy, proiskhodyaschikh pri obrazovanii kristallicheskoj struktury boridov v stalyakh // *Poverkhnost. Rentgenovskie, sinkhronnye I neytronnye issledovaniya*. – 2011. – No.3. – P. 99-106.
8. Filonenko N.Yu. Doslidzhennya termodynamichnykh funkcij faz, scho mistyat bor, systemy Fe-B-C // *Physics and Chemistry of Solid State*. – 2011. – Vol. 12. – No. 2. – P. 370-374.
9. Tverdokhlebova S.V. Spektrometriya borsoderzhaschikh splavov // *Visnyk Dnipropetrovskogo universytetu. Seria «Fizyka. Radioelektronika»*. – 2007. – Issue 14. – No. 12/1. – P. 100-104.
10. Filonenko N.Yu., Bereza E.Yu., Bezrukavaya O.G. Vliyanie ugleroda na fazovyy sostav i fazovye prevrascheniya v splavakh sistemy Fe-B // *Problems of Atomic Science and Technology*. – 2013. – No.5(87). – P. 168-171.
11. Matyushenko N.N. Krystallicheskie struktury dvoynykh soedinenij. – Moscow: Metallurgiya, 1960. – 301 p.
12. Kuzma Yu.B. Kristallokhimiya boridov. – Kyiv: Vyscha shkola, 1983. – 159 p.
13. Shubert K. Kristallicheskie struktury dvukhkomponentnykh faz. – Moscow: Metallurgiya, 1971. – 531 p.
14. Narai-Sabo I. Neorganicheskaya kristallokhimiya. – Izdatelstvo Akademii nauk Vengrii, 1969. – 564 p.
15. Bereza O.Yu., Filonenko N.Yu., Baskevich O.S. Doslidzhennya vplyvu energii zvyazku na utvorenniya bormistyachikh faz u splavakh systemy Fe-B-C // *Physics and Chemistry of Solid State*. – 2012. – Vol. 13. – No.3. – P. 968-973.
16. Matsyina Z.A., Milyan M.I. Teoriya rastvorimosti v uporyadochennykh fazakh. – Dnepropetrovsk: DGU, 1991. – 180 p.

PACS: 61.72 Dd, Ff

X-RAY DIFFRACTION ON THE EDGE-DISLOCATION NEIGHBORHOOD: FINITE-DIFFERENTIAL APPROACH

D.G. Malykhin

*National scientific center "Kharkov Institute of Physics and Technologies", Kharkov, Ukraine
1, Akademicheskaya st., Kharkov, Ukraine, 61108*

E-mail: dmitr.malykhin@yandex.ua

Received March 30, 2016

Results of a precise calculation of X-ray diffraction on distorted edge-dislocation neighborhood in crystals are represented. Calculation of lattice sums of diffraction has been carried out with adherence to the classical scheme. So unlike to the previous approach, finite-differential distances of atomic pairs of diffraction were immediately taken into account here. The statistical form of their representation was used. Obtained results are compared with previous those based on identification of X-ray profiles with statistical strain distribution. It was found that accuracy of the previous result is sufficient for analyses of the dislocation structure with moderate inhomogeneity.

KEYWORDS: dislocations, strain, X-ray diffraction, theory of scattering, calculation

РЕНТГЕНІВСЬКА ДИФРАКЦІЯ НА ОКОЛИЦЯХ КРАЙОВИХ ДИСЛОКАЦІЙ: КІНЦЕВО-РІЗНИЦЕВИЙ ПІДХІД

Д.Г. Малихін

*Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут», Харків, Україна
вул. Академічна 1, м. Харків, Україна, 61108*

Представлено результати прецизійного розрахунку дифракції від спотвореної околиці крайової дислокації. Розрахунок решіткових сум дифракції проведено, максимально дотримуючись класичної схеми. Тож, на відміну від попередніх розрахунків, у цьому разі безпосередньо враховувалися кінцево-різницеві дистанції атомних пар дифракції. Використано статистичну форму їх подання. Зроблено зіставлення результатів з попередніми розрахунками, що засновані на ототожненні профілів рентгенівської дифракції зі статистичним розподілом спотворень. Встановлено, що точності попереднього результату достатньо для аналізу дислокаційної структури з помірною неоднорідністю.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: дислокації, спотворення кристалічної решітки, рентгенівська дифракція, теорія розсіювання, розрахунок

РЕНТГЕНОВСКАЯ ДИФРАКЦИЯ НА ОКРЕСТНОСТЯХ КРАЕВЫХ ДИСЛОКАЦИЙ: КОНЕЧНО-РАЗНОСТНЫЙ ПОДХОД

Д.Г. Малихин

*Национальный научный центр
«Харьковский физико-технический институт», Харьков, Украина
ул. Академическая 1, г. Харьков, Украина, 61108*

Представлены результаты прецизионного расчёта дифракции от искажённой окрестности краевой дислокации. Расчёт решёточных сум дифракции проведен, максимально следуя классической схеме. Так, в отличие от предыдущих расчётов, в данной работе непосредственно учитывались конечно-разностные дистанции атомных пар дифракции. Использовалась статистическая форма их представления. Проведено сопоставление результатов с предыдущими расчётами, основанными на отождествлении профилей рентгеновской дифракции со статистическим распределением искажений. Установлено, что точности предыдущего результата достаточно для анализа дислокационной структуры с умеренной неоднородностью.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: дислокации, искажения, рентгеновская дифракция, теория рассеяния, расчёт

Recent methods of X-ray (XRD) studies of dislocation structure in polycrystalline materials are reduced onto determination of density of dislocations by data of strain (microstrain) parameters of structure. The formula of Wilkens for determining the root-mean-square (rms-) strain in dislocations neighborhood [1] was accepted as that basis. Up to now this approach is used in almost all the works of this area [2-5].

Generally, the numerical values of dislocation density obtained in this way are higher than those done by transmission electron microscopy (TEM). Leaving aside accuracy of TEM, we can note reasons for possible inaccuracies of XRD techniques in such tasks.

So, the expedient of square averaging of microstrain is accepted from classical tasks of extraction their effect from X-ray diffraction on distorted polycrystalline. In this case, both the microstrain distribution in itself (ϵ_i) and the corresponded X-ray diffraction are finally described by the Gaussian function: $P(\epsilon) = A \exp(-k\epsilon^2)$ [6, 7]. However this is typical likely for random nature of intergranular strain (i.e. elastic strain in grain scale) than for distortions, which regularly change in the dislocations neighborhood. This is confirmed by studies of dislocation structure in deformed Zircalloy-2 [8], done by both the traditional XRD methods [1-3] and TEM [9]. By means of these studies, it is found that the XRD determination of the dislocation density in the alloy gives an overestimate value owing to an intergranular

part of strain. On the other hand, view of diffraction profiles for own dislocation strain occurs closed to the Cauchy function: $P(e) = A/(1+ke^2)$. This has been found on an irradiated single crystal of Zr in the same studies.

It follows from this, that to determine the dislocation density by XRD, a technique is required with a more coherent approach and detailed constructing of the diffraction pattern. The first step in this way was taken in [3]. However, in this work, a used approach was still applicable only for the random distortions. Thus, the calculated diffraction profile in this case was a little differed from the Gaussian.

A more coherent approach was done in [10]. So a subject for calculation was a model of crystal lattice distortions in neighborhood of an edge dislocation. With using both elasticity and boundary conditions, an exact and unambiguous mathematical solution was found. An only limitation further relates to postulated similarity between the shape of the diffraction profile on microstrain $I^\epsilon(h)$ in crystal lattice, and a function $P(e)$ of its statistical distribution, that is at the identity $e \equiv h$, where h is the relative coordinate in the reciprocal lattice (see later). Existence of such approximate similarity is implied in research tasks of this direction [11]. In particular, it is done for the random strain because the Gaussian function describes both its distribution and diffraction.

Because of this similarity, that calculation [10] was reduced to determination the function of strain distribution $P(e)$. A result was obtained for its universal analogue $f(e/\epsilon_0) = \epsilon_0 P(e)$:

$$f(q) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\pi/2} \frac{(\sqrt{q^2 + \cos^2 \phi} - |q|)^2}{\cos^2 \phi \sqrt{q^2 + \cos^2 \phi}} d\phi = -\frac{\sqrt{2}}{\pi} \int_0^{\pi} \frac{\cos \phi d\phi}{\sqrt{1 + 2q^2 + \cos \phi}}. \quad (1)$$

Parameter ϵ_0 was a certain combination of module of the Burgers vector and the radius of own neighborhood of edge dislocation: $\epsilon_0 = b/\pi R$. For tasks limited by plane explication ($b \in (x,y)$), as it has been shown, the function $f(q)$ and their intrinsic parameter ϵ_0 not depend on the direction of Burgers vector.

That result occurs acceptable for a satisfactory simulation of the shape of X-ray lines. Moreover, it did a principle agreement with the Voigt-function technique widely used for line approximation [12, 13].

A question stays open about definition of dislocations density, how accurate it may be on this pattern. In other words, how highly data of XRD and TEM will be divided. In investigations of hafnium substructure such data showed a satisfactory accordance [14], but gave a significant discrepancy for SHF-quenched alloy Zr-2,5%Nb [15, 16]. Methodical inaccuracy – a possible reason for these differences – may significantly be associated with both a sharp spatial inhomogeneity of strain in the neighborhood of dislocations and a great nonlinearity of its own statistical distribution. Thus, formal identification of the distribution functions with those of diffraction can give inaccuracy. This would be significant in relation to the dislocation strain.

The aim of this work is to resolve the problem concerned with such reason of inaccuracy, i.e. to determine the degree of accuracy in the similarity between the shape of the XRD-line profile on dislocations strain and its statistical distribution. To do this, a task of using a more precise approach for calculation of diffraction has outlined. It is meant an approach more coherent to the classical basis [17-20]. So, it is supposed to calculate the diffraction function including, instead of strain distribution, the distribution of real distances between the displaced atoms of the lattice. In fact it is implied to replace the differential approach onto finite-differential one, and to do this for case of edge dislocation.

FORMULATION OF PROBLEM

Well known classical basis of calculations is formal summation of reflection amplitudes $A(\mathbf{S})$ and X-ray intensities $I(\mathbf{S})$ (with a diffraction vector \mathbf{S}) in area of a grain, carried out on coordinates of all atoms \mathbf{r}_j with accounting their real displacements [17-20]:

$$A(\vec{S}) = \sum_j^N \exp(\vec{S} \cdot \vec{r}_j); \quad (2)$$

$$I(\vec{S}) = \frac{1}{2} \left| \sum_j^N \exp(\vec{S} \cdot \vec{r}_j) \right|^2 = \frac{N}{2} + \sum_{j \neq j'}^N \cos[\vec{S} \cdot (\vec{r}_j - \vec{r}_{j'})]; \quad (3)$$

wherein j and j' are, generally speaking, two independent numbering of atoms on all their multitude N in the grain. However, according to the known postulates [11, 21], the sum (3) is practically reduced to accounting only j - j' -pairs oriented along the diffraction vector. In this case, the account is convenient to carry on other pair of indices: let j be the position of the centers of the atomic pairs (in $\{N\}$), and $2n$ be their integer range (> 0).

Just as in the previous calculations, we may use a system of dimensionless variables: $\Delta \mathbf{r}_{j,j'} \rightarrow 2n + (u_{j,n} - u_{j',n})/d_0$ and $\mathbf{S} \rightarrow 2\pi(H + h)$, wherein $u_{j,\pm n}$ are displacements of atoms of the pair from the ideal positions, d_0 is the spacing, H is the order of reflection, and h is the relative coordinate in the neighborhood of reflecting position in the reciprocal lattice. As a result, the formula (3) is transformed onto the following expression:

$$I(h) = \frac{N}{2} + \sum_{2n>0} \sum_j^N \cos\{2\pi[2n + (u_{j,n} - u_{j,-n})/d_0](H + h)\}. \quad (4)$$

Mentioned limitation followed from linear approximation, whereby the previous calculations have been simplified. This is a linear representation of the distances between a pair of atoms in the formula (4): $u_{j,n} - u_{j,-n} = 2nd_0e_j$; $\Delta r_{jj'} \rightarrow 2n(1+e_j)$. Because e_j and h are small quantities, the argument of cosine (4) was reduced to expression $4\pi n(e_jH + h)$. If additionally to include, as it was done, the statistical distribution $P(e)$ of values e_j , formula (4) will be simplified:

$$I^e(h) = \frac{N}{2} + \sum_{2n>0} \int_{-\infty}^{\infty} P(e) \cos 4\pi n(eH + h) de. \quad (5)$$

Fourier inversion of it leads to the following expression:

$$\int_{-\infty}^{\infty} I^e(h) \cos 4\pi nh \cdot dh = \int_{-\infty}^{\infty} P(e) \cos 4\pi neH \cdot de. \quad (6)$$

As follows from the similarity of representation of the left and right side of (6), when $h \equiv eH$, identity occurs between the intensity function and the strain distribution. As mentioned, it was taken as a basis for the previous calculation [10].

The essence of the comments is that: to describe the diffraction on strain, use of the distribution $P(e)$ is virtually restricted by limits of small values of $2n$. It is acceptable for the functions with no high non-linearity, but real distribution $P(e)$ must be not that, especially at small e .

Thus, it is provided to reiterate the calculation with accounting real interatomic distances without any limitations, as much as it is possible. It is supposed for this to calculate numerous distributions of the interatomic distances (function $P_n(\varepsilon)$) with fixed values $2n$ for each one, performing calculations on own neighborhood of edge dislocation and presenting these functions through the value of strain (ε_n) averaged inside a pair of atoms: $\Delta r_{jj'} \rightarrow 2n(1+\varepsilon_n)$. It is adequate to some substitution into the formula (5):

$$I^e(h) = \sum_{2n} \int_{-\infty}^{\infty} P_n(\varepsilon_n) \cos[4\pi n(\varepsilon_n H + h)] d\varepsilon_n. \quad (7)$$

CALCULATION RESULTS

Formulas for calculation. Just as in the previous task, the calculations are based on mathematical description of field of elastic displacements \mathbf{u} in the neighborhood of an edge dislocation, which Burgers vector is oriented along the coordinate y . The expression was obtained in polar and Cartesian coordinates - (r, φ) and (x,y) [10, 21]:

$$u_y = \frac{b}{2\pi} \left(\varphi - \frac{r^2}{2R^2} \sin 2\varphi \right) = \frac{b}{2\pi} \left(\arctan \frac{y}{x} - \frac{xy}{R^2} \right); \quad (8)$$

$$u_x = \frac{b}{2\pi} \left(-\ln r + \frac{r^2}{2R^2} \cos 2\varphi \right) = \frac{b}{4\pi} \left[-\ln(x^2 + y^2) + \frac{x^2 - y^2}{R^2} \right]. \quad (9)$$

The first terms in all the parentheses are components of the logarithm of complex variable $z = x + iy$, and represent own field of the dislocation [22]. The second terms are expressed by components of the quadratic function $z^2/2R^2$, and represent so-called "image forces". In general, the solution satisfies the condition of elastic equilibrium: $\partial u_x/\partial x + \partial u_y/\partial y = 0$; $\partial u_x/\partial y - \partial u_y/\partial x = 0$ [22, 23].

With including the image forces, the boundary conditions are achieved. They are specific for XRD: $\varepsilon(\mathbf{R}) = \varepsilon_{yy}(\mathbf{R}) = du_y(\mathbf{R})/dy = 0$. This is a result of exclusion of statistical deviations by achieving unambiguity of accounting the strain on the border of circular neighborhood of the dislocation (with radius R). In this finite-differential task, this moment could be significant.

Further parameters and coordinates are practically used in a dimensionless form: $d_0 = b = 1$; $R/d_0 \rightarrow R$; $(x/d_0, y/d_0) \rightarrow (x,y)$.

In the general scheme of further calculations two options have been included: $\mathbf{S} \parallel \mathbf{b}$ и $\mathbf{S} \perp \mathbf{b}$. Primarily an analytical expression is obtained for the average strain on base an equation $2n\varepsilon_n = u_{j,n} - u_{j,-n}$. It is done by the difference $u_y(x,y+n) - u_y(x,y-n)$ (8) for the first variation ($\mathbf{S} \parallel \mathbf{b} \parallel Y$), and by $u_x(x+n,y) - u_x(x-n,y)$ (9) for the second one ($\mathbf{S} \perp \mathbf{b} \parallel Y$), where (x,y) are the median coordinates of atomic pairs. To display the required distribution, the obtained formulas have been converted onto dependence of the x or y from ε_n . Explicitly, this was feasible for y . Thus, the following formula is obtained for the first variation:

$$y(\zeta_n) = \sqrt{2nx \cot[2n(\zeta_n + x/R^2)] - x^2 + n^2}, \tag{10}$$

wherein $\zeta_n = 2\pi\epsilon_n/b$. Being obtained in this way, the formula for the second cause actually differs from the first one by substitution $n \rightarrow in$, whereby the cotangent (10) converts onto the hyperbolic form, and the result stays real.

Details of numerical calculations. Numerical calculation of the distribution function is the next step. First of all, values S_n are determined using the formula (10) as yardage of an area limited by fixed values ϵ_n within the neighborhood ($x^2 + y^2 \leq R^2$). The distributions $P_n(\epsilon_n)$ (7) is further calculated by differentiation:

$$P_n = -dS_n/S_0 d\epsilon_n \left[S_n = \int_{-R}^R y(x, \epsilon_n) dx \right]. \tag{11}$$

wherein $S_n(0) \approx \pi R^2$ in fact up to medium n . Differentiation of S_n is substituted onto differences at the interval $\pm \Delta q/2$. Similarly with the manner applied to output the formula (1) [10], the reduced and renormalized functions and coordinates were practically used: $i^\epsilon(h/\epsilon_0) = \epsilon_0 F^\epsilon(h)$; $f_n(q) = \epsilon_0 P_n(\epsilon)$, wherein $q = \epsilon/\epsilon_0$, $H = 1$. Analytical and empirical relationships were represented by rows with such increments: $\Delta q = 0,02$; $\Delta x/R = 0,002$; $\Delta 2n/R = 0,02$.

Further according to (7) and the followed transformations, the numerical calculation of the Fourier coefficients (F_n) for the functions $f_n(q)$ is carried out:

$$F_n = \Delta q \left\{ f_n(0) + 2 \sum_{i=1}^{i_{\max}} f_n(q_i) \cos[2\pi q_i (2kn/R)] \right\}. \tag{12}$$

The calculation results are shown in Fig. 1 for the variation $S \parallel b$.

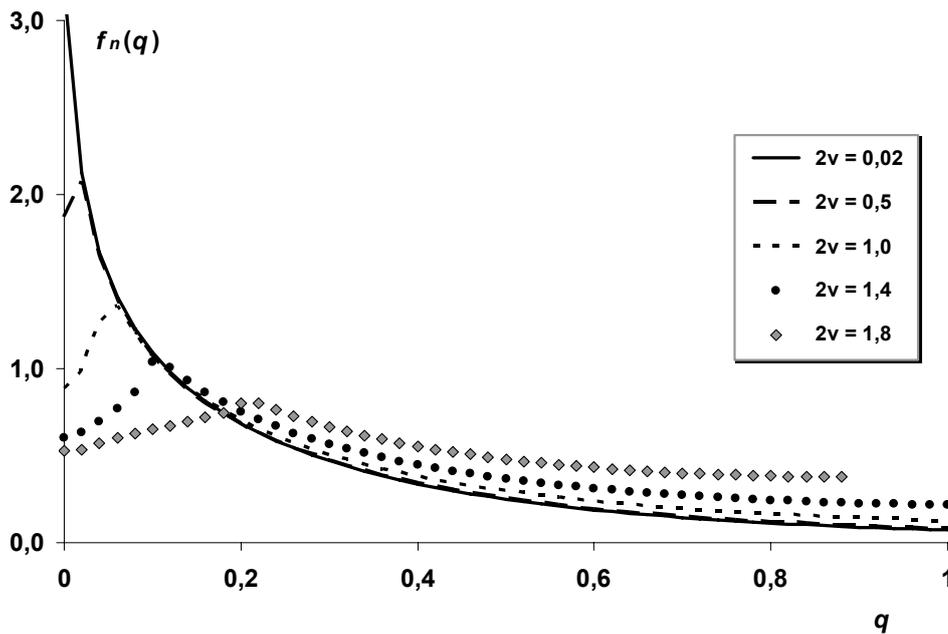


Fig. 1. View of the reduced distributions $f_n(q)$ of strain $\epsilon = \epsilon_0 q$ calculated for the variation $S \parallel b$ with different values of $2v = 2kn/R$

Obtained coefficients are included in calculation of the profile $i^\epsilon(h/\epsilon_0)$:

$$i^\epsilon(q) = \frac{2k}{R} \left\{ F_0 + 2 \sum_{2n=1}^R F_n \cos[2\pi q (2kn/R)] \right\}. \tag{13}$$

The scaling factor k was chosen to maximize elimination of inaccuracies in the harmonic approximation – small oscillations and an effect of large-scale periodicity. In particular, by limiting $2n \leq R$, the optimal solution was obtained as a function with the period $2q_{\max} = 4$:

$$i_p^\varepsilon(q) = \sum_m i^\varepsilon(q - 2mq_{\max}). \tag{14}$$

Results of calculation of this intensity (14) are shown in Fig. 2 for the variations $S \parallel b$ и $S \perp b$. Because the function $f_{1/2}(q)$ ($2n = 1$) occurs identical for both them and moreover coincides with $f(q)$ (1) [10] within the error 0,001, a $f_p(q)$ function as its analogue has been calculated by the same manner (14) and is also shown. A decrement $\Delta i = i_p^\varepsilon - f_p$ is also done.

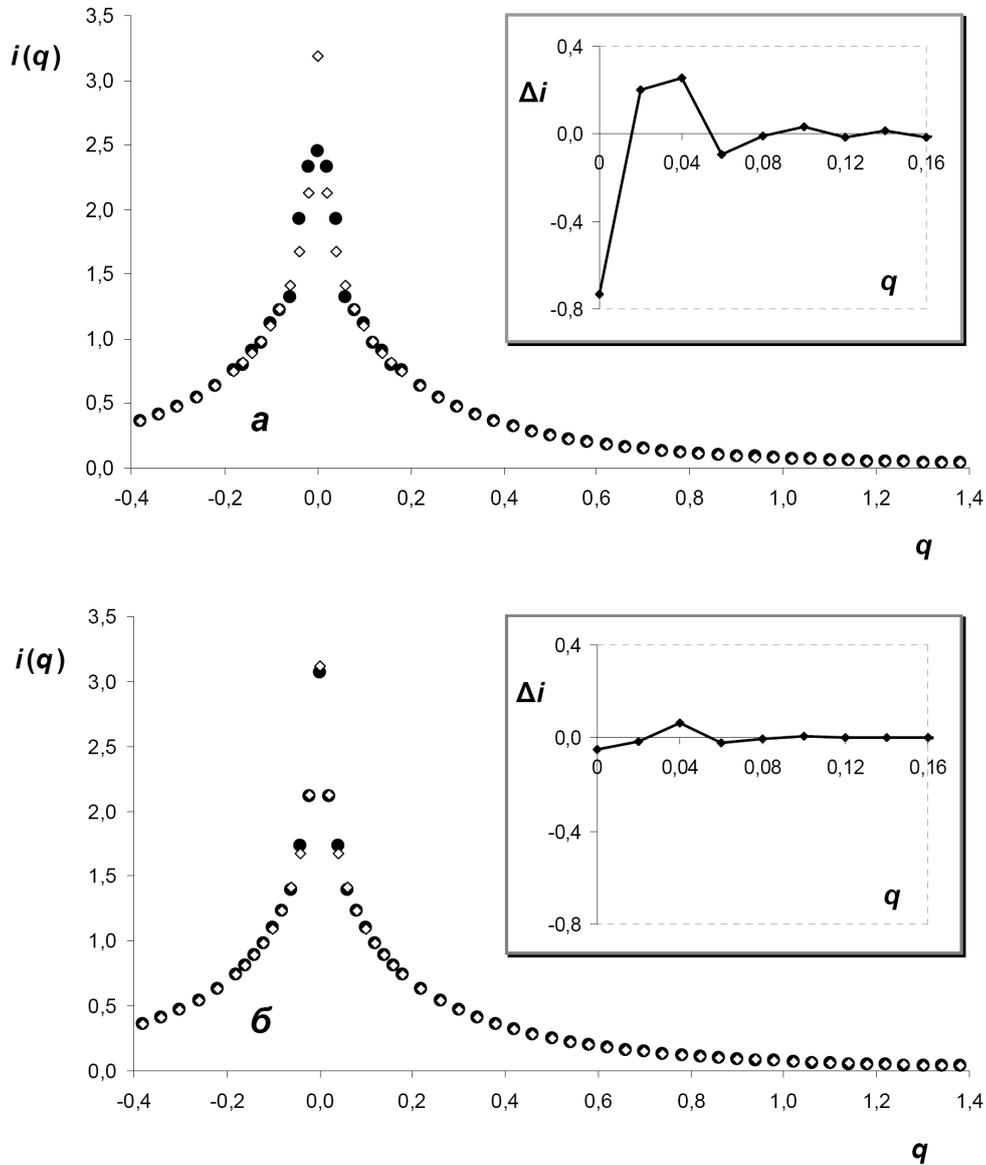


Fig. 2. Representation of the calculation results for the reduced intensity $i_p^\varepsilon(q)$ (●) and the function $f(q)$ (◊) with their inequality Δi for the cases $S \parallel b$ (a) and $S \perp b$ (b)

DISCUSSIONS

As follows from the data (Fig. 2), at $h/\varepsilon_0 \equiv q > 0.08$ the reduced intensity $i^\varepsilon(h/\varepsilon_0)$ is almost identical to its prototype that is the function $f(q)$. This can be explained by similarity of the functions $f_n(q)$ with $f(q)$ (at such q) in a wide range of values $2n$ (Fig. 1).

Mismatches Δi with their decaying oscillation occur at small q (< 0.08), and may be attributed to both the effects of discrete nature of numerical series at Fourier approximation and unavoidable deviations in compliance the calculation conditions. In particular, relatively increased level of the mismatch for option $S \parallel b$ as considered is due to irregularities of the trigonometric cotangent (10) and, due to this, was concerned with the forced inclusion of additional restrictions.

Being restricted by small values of strain, those discrepancies thus arise in the boundary (interdislocation) field of the environment. On the other hand, it is clear that the boundary condition accepted from previous calculations [10] and realized by input into formulas (8) and (9) additional terms do not remains adequate for this task at higher values of $2n$.

Obviously, irregular behavior of the functions $f_n(q)$ with small q (Fig. 1) may be explained by this. Thus, these two cases are interconnected.

By input of such conditions it was provided to eliminate the ambiguities in the same manner as the previous calculations were carried out. This is operation with unambiguous dependencies, and the own elastic fields of dislocations are those. Even the strain distributions near the dislocation core are statistical here only on the form of representation, but not in nature. So averaged distortions equaled to zero on limits is the immediate condition of such unambiguity. Whatever the numerical simulation of it and its accuracy, true result must also ensure the regularity at small q both the functions P_n and f_n , and the diffraction profile $i(q)$ what would built. Likeness between $i(q)$ и $f(q)$ must follow here from this in addition to large-scale similarity.

CONCLUSION

So, for a pattern of X-ray diffraction profile on the neighborhood of an edge dislocation, which is based on its mathematical similarity with a statistical strain distribution within this neighborhood, an accuracy test has been carried out by a modified calculation. To calculate the distributions, the point values of distortions were averaged in the intervals between the atoms pairs of diffraction.

When the calculation results were compared with the diffraction of its prototype [10], their practical coincidence on almost the entire region of strain is revealed. The numerical differences and damped oscillations are detected in the narrow area of low strain. Harmonic nature of the differences is associated with the result of the application of Fourier transformations, and their main reason is done with the inadequate expression of boundary conditions for this task.

From this it follows that the prototype of diffraction on a neighborhood of an edge dislocation, i.e. the statistical distribution of point values of strain in this neighborhood, has a satisfactory accuracy as the solution of the stated methodological task.

In particular, at the option of crystallographic isotropy, this also concern to definition the parameter of dislocation distortion (ϵ_0), precisely speaking – its components corresponding to the types and configurations of dislocations. It is worth mentioning [10] that these components form this parameter by a linear combination – with coefficients that comprise angles β of deviation the main directions of dislocation lines from the diffraction vector. For edge dislocations such coefficient is $\sin^2\beta$, for screw ones – $\sin\beta\cos\beta$. The dislocation density of each component (j) can be estimated using the formula $\rho_j = \pi\epsilon_{0j}^2 / b_j^2$ [10].

Crystallographic anisotropy of materials can only affect the internal parameters (ϵ_{0j}) of the distribution $f(q)$. If the edge dislocations directs along any axis of the crystallographic basis, such anisotropy will most appear in a direction perpendicular to the Burgers vector. At this, for their density calculated from the real parameters using the original formulas, the relative change will determined by dividing it per the ratio of the elastic modules $(c_{22}+c_{12})/(c_{11}+c_{12})$, where the indices (11) correspond to this direction. For the metals of the titanium subgroup (except for beryllium) the changes do not exceed 10%.

As general considerations, nonuniformity of distribution of dislocations may be the main reason of practical inaccuracy at calculation of their density by both the techniques [10]. This has logical connected with a fact that the moderate level of such nonuniformity in deformed hafnium [14] is a reason of achieving accordance between obtained XRD and TEM data on it. Sharp irregularity of the distribution of strain ($f(q)$) at low q can give significant inaccuracy concerned with higher level of it. At such cases, most adequate results can be obtained from analysis of tails of the diffraction.

REFERENCES

1. Wilkens M. The determination of density and distribution of dislocations in deformed single crystals from broadened X-ray diffraction profiles // Phys. Status Solidi (a). – 1970. – Vol.2. – P.359-370.
2. Williamson G.K., Smallman R.E. Dislocation densities in some annealed and cold-worked metals from measurements on the X-Ray Debye-Scherrer Spectrum // Phil. Mag. 1956. – Vol.1. – No.1. – P.34-46.
3. Krivoglaz M.A. Difraktsija rentgenovskih luchej I neitronov v neideal'nyh kristallah. – Kiev: “Naukova dumka”, 1983. – P.322-329.
4. Ungar T., Biermann H., Mughrabi H. Dislocation distributions as seen by X-ray line profiles // Mater. Sci. Eng. – 1993. – Vol.164A (1-2). – P.175-179.
5. Kamminga J.-D., Delhez R. Calculation of diffraction line profiles from specimens with dislocations. A comparison of analytical models with computer simulations // J. Appl. Cryst. – 2000. – Vol.33. – P.1122-1127.
6. Warren B.E., Averbach B.L. The separation of cold-work distortion and particle size broadening in X-ray patterns // J. Appl. Phys. 1952. – Vol. 23. – No.4. – P.497.
7. Iveronova V.I., Revkevich G.P. Teorija rassejanija rentgenovskih luchej. – Moscow: Moscow University, 1972. – 247 p.
8. Griffiths M., Sage D., Holt R.A. et al. Determination of dislocation densities in hcp-metals from X-ray diffraction line-broadening analysis // Metallurgical and material transactions A. – 2002. – Vol.33A. – P.859-865.
9. Hirsh P., Hovey A., Nicolson R. et. al. Electron microscopy of thin crystals. – Moscow: Mir, 1968. – 575 p. (rus.).
10. Malykhin D.G. An X-Ray method of analysis of dislocation structure in hcp metals // Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Ser.: Vacuum, pure metals, superconductors. – 2014. – No.1 (89). – P.56-59.
11. Warren B.E., Averbach B.L. The effect of cold-work distortion on X-ray patterns // J. Appl. Phys. 1950. – Vol.21. – No.6. – P.595-599.

12. Selivanov V.N., Smyslov E.F. An analysis of polydispersion at approximation X-ray diffraction profile by Voigt-function // *Zavodskaja laboratorija*. –1991. – Vol.57. – No.7. – P.28-31.
13. Sarkar A., Mukherjee P., Barat P. Effect of heavy ion irradiation on microstructure of zirconium alloy characterized by X-ray diffraction // *Journal of nuclear materials*. – 2008. – Vol.372. – P.285-292.
14. Kovtun K.V., Kovtun G.P., Malykhin D.G. et. al. Evolution of microstructure and texture at cold-working of hafnium GFE-1 // *Transactions of XIX International conference on Physics of radiation effects and Radiation material science / NSC KIPT, Kharkov, 2010*. – P.174-175.
15. Malykhin D.G., Kovtun G.P., Kornyejeva V.V. et. al. “Memory” of phase transformation and dislocation structure of SHF-quenched Zr-2.5%Nb alloy // *Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Ser.: Physics of radiation damages and Radiation material science*. – 2011. – No.4(98). – P.48-54.
16. Stukalov A.I. Phase-structural state of Zr-2.5%Nb alloy after SHF-treatment // *Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Ser.: Physics of radiation damages and Radiation material science*. – 2000. – No.4(78). – P.105-117 (rus.).
17. Pines B.J. *Lektsii po strukturnomu analizu*. 3-th Ed. – Kharkov: Kharkov University, 1967. – 478 p. (rus.).
18. Umansky J.S. *Rentgenografija metallov*. – Moscow: Metallurgy, 1967. – 236 p. (rus.).
19. Guinier A. *Rentgenografija kristallov*. – Moscow: Phys. and math. lit., 1961. – 604 p. (rus.).
20. Kitaygorodsky A.I. *Rentgenostrukturnyj analiz*. – Moscow-Leningrad: Tech. and theor. lit., 1950. – 650 p. (rus.).
21. Malykhin D.G., Kornyejeva V.V. A calculation of X-ray diffraction on strain field of edge dislocations // *The Journal of Kharkiv National University, physical series “Nuclei, Particles, Fields”*. – 2009. - No.845. – Iss.1(41). - S.77-81.
22. Lavrentiev M.A., Shabat B.V. *Metody teorii funktsij kompleksnogo peremennogo*. 4-th Ed. – Moscow: Science, 1973. – 736 p. (rus.).
23. Landau L.D., Lifshits E.M. *Teoreticheskaja fizika. Vol. VII: Teorija uprugosti*. 4-th Ed. – Moscow: Science, 1987. –248 p. (rus.).

PACS: 87.63.D-, 87.63.dk

THE INFLUENCE OF THE DYNAMIC CHANGE OF ULTRASOUND SYSTEM SENSITIVITY FUNCTION ON THE SPECTRA OF DOPPLER RESPONSE SIGNALS

E.A. Barannik, O.S. Matchenko

*V.N. Karazin Kharkiv National University
Svobody Sq. 4, 61022, Kharkov, Ukraine
e-mail: sasha.matchenko@gmail.com*

Received March 4, 2016

The previously developed continuum model of ultrasound wave scattering from inhomogeneities of mass density and compressibility was generalized in the present paper to the case of dynamically changing sensitivity function of ultrasound diagnostic system. The general expression relating the full power spectrum of Doppler response signal from the region of interest to spectral characteristics of scattering inhomogeneities movement and components of the probing ultrasound fields on spatial and temporal harmonics was obtained. The results of the work can be useful for the analysis of spectra obtained by means of modern diagnostic systems with dynamic focusing of transmitted beams by synthetic aperture method.

KEYWORDS: ultrasound, Doppler spectrum, continuum model of scattering, sensitivity function, dynamic focusing, synthetic aperture method

ВЛИЯНИЕ ДИНАМИЧЕСКОГО ИЗМЕНЕНИЯ ФУНКЦИИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ СИСТЕМЫ НА СПЕКТРЫ СИГНАЛОВ ДОПЛЕРОВСКОГО ОТКЛИКА

Е.А. Баранник, А.С. Матченко

*Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина
61022, пл. Свободы, 4, Харьков, Украина*

Развитая ранее континуальная модель рассеяния ультразвуковых волн на неоднородностях плотности и сжимаемости обобщена в настоящей работе на случай динамически изменяющейся функции чувствительности ультразвуковой диагностической системы. Получено общее выражение, связывающее полный спектр мощности сигнала ультразвукового доплеровского отклика из области интереса, спектральные характеристики движения рассеивающих флуктуаций плотности и сжимаемости и компоненты зондирующего ультразвукового поля на пространственных и временных гармониках. Результаты работы могут быть полезны при анализе спектров, полученных современными диагностическими системами с динамическим фокусированием излучаемых пучков по методу синтезированной апертуры.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ультразвук, доплеровский спектр, континуальная модель рассеяния, функция чувствительности, динамическое фокусирование, метод синтезированной апертуры

ВПЛИВ ДИНАМІЧНОЇ ЗМІНИ ФУНКЦІЇ ЧУТЛИВОСТІ УЛЬТРАЗВУКОВОЇ СИСТЕМИ НА СПЕКТРИ СИГНАЛІВ ДОПЛЕРІВСЬКОГО ВІДГУКУ

Є.О. Баранник, О.С. Матченко

*¹Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
м. Свободи 4, 61022, Харків, Україна*

Розвинена раніше континуальна модель розсіювання ультразвукових хвиль на неоднорідностях густини та стисливості узагальнена в даній роботі на випадок динамічно змінюваної функції чутливості ультразвукової діагностичної системи. Отримано загальний вираз, що пов'язує повний спектр потужності сигналу ультразвукового доплерівського відгуку з області інтересу, спектральні характеристики руху розсіюючих флуктуацій густини і стисливості та компоненти зондуючого поля на просторових та часових гармоніках. Результати роботи можуть бути корисні при аналізі спектрів, отриманих сучасними діагностичними системами з динамічним фокусуванням випромінюваних пучків за методом синтезованої апертури.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: ультразвук, доплерівський спектр, континуальна модель розсіювання, функція чутливості, динамічне фокусування, метод синтезованої апертури

Как известно, в последнее время развиваются и внедряются в медицинскую практику перспективные методы ультразвуковой доплеровской диагностики состояния сердечно-сосудистой системы и мягких тканей. К числу таких методов относятся, в частности, ультразвуковая доплеровская эхоскопия, включая спектрально-доплеровские исследования и цветное доплеровское картирование потоков крови, тканевая доплерография, вибрационная и соноэластография [1-7].

Для теоретического и экспериментального исследования доплеровских спектров, характерных для различных медицинских приложений ультразвука, необходима адекватная физическая модель рассеяния ультразвука на неоднородностях биологической ткани или жидкости, учитывающая как характеристики движения этих неоднородностей, так и геометрию зондирующих пучков волн и параметры излучения [8].

В частности, с использованием точных решений параболического уравнения теории дифракции для описания ультразвуковых полей и известных методов асимптотической оценки интегралов, был разработан подход, позволяющий получить аналитическое выражение для спектра мощности ультразвукового

доплеровского отклика из области интереса используя его интегральное представление и оценить вклады некоторых физических факторов в результат [9-11].

Более того, на основании континуальной модели со стационарными зондирующими полями в [12] были получены практически важные решения для спектров мощности доплеровского отклика при равномерном, коррелированном, колебательном и равноускоренном движении рассеивателей, исследовано влияние эффекта диффузии. В работе [13] подробно проанализированы амплитудно-частотные характеристики спектров мощности отклика при равноускоренном движении рассеивателей, исследована связь между оптимальными параметрами измерения, ускорением рассеивателей в потоке и волновым вектором зондирующего ультразвукового поля. Эти результаты актуальны и находят применение, в частности, в ультразвуковой доплеровской виброэластографии, спектрально-доплеровских исследованиях, цветовом доплеровском картировании потоков крови и других приложениях.

Тем не менее, до сих пор актуально исследование влияния на спектры ряда физических факторов, характеризующих состояние биологического объекта и его движение. Это касается, в частности, нестационарного движения крови в артериях, коррелированного движения мышечных филаментов и так далее [12-14]. Однако наименее исследовано в теоретическом плане к настоящему времени влияние фактора динамического изменения параметров и геометрии зондирующих ультразвуковых полей на спектры доплеровских сигналов и, соответственно, на оценки параметров движения биологических объектов.

Целью настоящей работы является исследование влияния динамического изменения функции чувствительности ультразвуковой системы на спектры сигналов доплеровского отклика в рамках континуальной модели рассеяния ультразвука на неоднородностях плотности и сжимаемости среды.

МОДЕЛЬ

Теоретическое исследование процесса рассеяния ультразвука кровью и мягкими тканями осуществлено в [8, 15, 16] в предположении о том, что эти биологические объекты взаимодействуют с полем излучателя подобно изотропной сплошной среде. Рассеяние, таким образом, происходит на неоднородностях плотности $\rho(\vec{r}, t)$ и сжимаемости $\beta(\vec{r}, t)$ этой среды. В случае малых флуктуаций

$$\tilde{\rho} \equiv \tilde{\rho}(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t)^{-1}[\rho(\vec{r}, t) - \rho_0] \ll 1, \tilde{\beta} \equiv \tilde{\beta}(\vec{r}, t) = \beta_0^{-1}[\beta(\vec{r}, t) - \beta_0] \ll 1$$

в области интереса рассеяние можно считать слабым и пренебречь процессами многократного рассеяния волн. Здесь ρ_0 и β_0 – пространственно-временные средние значения соответственно плотности и сжимаемости среды. В таком приближении низкочастотный доплеровский отклик из области интереса R , получающийся после демодуляции гармонического ультразвукового отклика движущейся биологической среды при импульсном режиме излучения ультразвуковых волн, может быть представлен в виде [8]:

$$f(t) = k^2 \int_R e^{2i(\vec{k}\vec{r} + \vartheta_c)} G_p'(\vec{r}, t) \{ \tilde{\beta}(\vec{r}, t) - \rho(\vec{r}, t) \gamma(\vec{r}, t) \} d\vec{r}, \quad (1)$$

где \vec{k} и $k = 2\pi/\lambda$ – волновой вектор и волновое число поля ультразвукового преобразователя в приближении плоских волн, λ – длина волны, ϑ_c – постоянная составляющая фазы сигнала, $G_p'(\vec{r}, t)$ – комплексная функция распределения чувствительности ультразвуковой системы по полю, которая в общем случае может зависеть от времени. При импульсном зондировании угол между волновыми векторами падающего и отраженного пучков волн равен нулю, потому безразмерный параметр $\gamma(\vec{r}, t) = (\vec{k} + \vec{\alpha}_t)(\vec{k} + \vec{\alpha}_r)k^{-2}$ в подынтегральном выражении формулы (1) отличается от единицы лишь пренебрежимо малыми добавками $\vec{\alpha}_{t,r}$, обусловленными дифракционной расходимостью пучков волн и отклонением формы волновых фронтов от плоских волн.

В соответствии с общей теорией [8], для описания полного спектра мощности $S(\omega)$ доплеровского сигнала, формируемого при движении биологических объектов, необходимо найти автокорреляционную функцию доплеровского сигнала (1):

$$R(\tau) = \langle f^*(\vec{r}_0, t_0) f(\vec{r}_1, t_1) \rangle = k^4 \iint_R e^{2i\vec{k}(\vec{r}_1 - \vec{r}_0)} \overline{G_p'(\vec{r}_0, t_0)} G_p'(\vec{r}_1, t_1) C(\vec{r}_1 - \vec{r}_0, \tau) d\vec{r}_0 d\vec{r}_1, \quad (2)$$

$$C(\vec{r}_1 - \vec{r}_0, \tau) = \langle (\tilde{\beta}(\vec{r}_0, t_0) - \rho(\vec{r}_0, t_0)) (\tilde{\beta}(\vec{r}_1, t_1) - \rho(\vec{r}_1, t_1)) \rangle.$$

Здесь $\tau = t_1 - t_0$ и $\langle \rangle$ означает усреднение по статистическому ансамблю. Для полного усреднения автокорреляционной функции по движению неоднородностей необходимо учесть различные начальные фазы движения, что соответствует усреднению по начальному моменту времени t_0 . В этом случае как для стационарного, так и для нестационарного детерминированного движения после полного усреднения по движению рассеивающих неоднородностей коррелятор флуктуаций $C(\vec{r}_1 - \vec{r}_0, \tau)$ оказывается в действительности функцией только разностной координаты и разностного времени.

Спектр мощности доплеровского сигнала представляет собой Фурье-образ корреляционной функции

$$S(\omega) = \int R(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau, \quad (3)$$

при вычислении которого необходимо учитывать явную зависимость от времени функции чувствительности ультразвуковой системы.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В практических приложениях регистрация сигналов ультразвукового доплеровского отклика производится в течение конечного промежутка времени T . В этом случае оценку спектра мощности доплеровского сигнала можно получить путем периодического продолжения с периодом T подынтегральных функций чувствительности в выражении (2) и выполнить их разложение в ряд Фурье:

$$G_p^{i*}(\vec{r}_0, t_0) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{2\pi i n t_0 / T} G_p^{i*}\left(\vec{r}_0, \frac{2\pi}{T} n\right), \tag{4}$$

$$G_p^i(\vec{r}_1, t_1) = \sum_{j=-\infty}^{\infty} e^{-2\pi i j (t_0 + \tau) / T} G_p^i\left(\vec{r}_1, \frac{2\pi}{T} j\right). \tag{5}$$

Коррелятор флуктуаций также представим в виде разложения в интеграл Фурье по пространственному аргументу и в виде ряда Фурье по времени:

$$C(\vec{r}_1 - \vec{r}_0, \tau) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\vec{q} e^{i\vec{q}(\vec{r}_1 - \vec{r}_0)} \sum_{m=-\infty}^{\infty} e^{-2\pi i m \tau / T} C\left(\vec{q}, \frac{2\pi}{T} m\right). \tag{6}$$

Здесь $C(\vec{q}, 2\pi m / T)$ дает представление о величине спектральных компонент корреляционной функции.

Подставляя приведенные разложения (4), (5) и (6) в (3), приходим к следующему выражению для спектра мощности:

$$S = \frac{k^4}{(2\pi)^3} \int dt e^{i\omega t} \int d\vec{q} \iint_R d\vec{r}_1 d\vec{r}_0 e^{i(\vec{q} + 2\vec{k})(\vec{r}_1 - \vec{r}_0)} \sum_{j,n,m} \overline{e^{\frac{2\pi i}{T}(n t_0 - j(t_0 + \tau) - m\tau)}} \cdot C\left(\vec{q}, \frac{2\pi}{T} m\right) G_p^i\left(\vec{r}_1, \frac{2\pi}{T} j\right) G_p^{i*}\left(\vec{r}_0, \frac{2\pi}{T} n\right). \tag{7}$$

Нетрудно заметить, что используя интегральное представление

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega \tau} d\tau = \delta(\omega)$$

и фильтрующее свойство дельта-функции, выражение (6) можно свернуть по одному из индексов. Таким образом, до усреднения по начальной фазе движения имеем

$$S = \frac{k^4}{(2\pi)^2} \int d\vec{q} \iint_R d\vec{r}_1 d\vec{r}_0 e^{i(\vec{q} + 2\vec{k})(\vec{r}_1 - \vec{r}_0)} \sum_{j,n} \overline{e^{\frac{2\pi i t_0}{T}(n-j)}} \cdot C\left(\vec{q}, \omega - \frac{2\pi}{T} j\right) G_p^i\left(\vec{r}_1, \frac{2\pi}{T} j\right) G_p^{i*}\left(\vec{r}_0, \frac{2\pi}{T} n\right).$$

Усреднив в пределах периода множитель, зависящий от t_0 и учитывающий начальную фазу изменения функции чувствительности, получаем

$$\overline{e^{\frac{2\pi i t_0}{T}(n-j)}} = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} e^{\frac{2\pi i t_0}{T}(n-j)} dt_0 = \frac{1}{2\pi i(n-j)} \{e^{i\pi(n-j)} - e^{-i\pi(n-j)}\} = \begin{cases} 0 \forall j \neq n \\ 1 \forall j = n \end{cases}$$

Исключив нулевые слагаемые при суммировании по n , приходим к следующему выражению для спектра мощности:

$$S = \frac{k^4}{(2\pi)^2} \int d\vec{q} \iint_R d\vec{r}_1 d\vec{r}_0 e^{i(\vec{q} + 2\vec{k})(\vec{r}_1 - \vec{r}_0)} \sum_{j=-\infty}^{\infty} C\left(\vec{q}, \omega - \frac{2\pi}{T} j\right) G_p^i\left(\vec{r}_1, \frac{2\pi}{T} j\right) G_p^{i*}\left(\vec{r}_0, \frac{2\pi}{T} j\right).$$

Наконец, вводя обозначения

$$\omega_j = \frac{2\pi}{T} j,$$

$$G(\vec{q} + 2\vec{k}, \omega_j) = \int d\vec{r} e^{i(\vec{q} + 2\vec{k})\vec{r}} G_p^i(\vec{r}_1, \omega_j),$$

получаем

$$S = \sum_{j=-\infty}^{\infty} S_j, \tag{8}$$

$$S_j = \frac{k^4}{(2\pi)^2} \int d\vec{q} C(\vec{q}, \omega - \omega_j) |G(\vec{q} + 2\vec{k}, \omega_j)|^2.$$

Общая формула (8) прямым образом обобщает интегральное выражение для спектра мощности

$$S = \frac{k^4}{(2\pi)^3} \int d\vec{q} C(\vec{q}, \omega) |G(\vec{q} + 2\vec{k})|^2,$$

полученное в [12] для стационарных зондирующих полей. Применение последнего ограничено анализом данных, полученных традиционными импульсными зондирующими системами, использующими один

ультразвуковой излучатель или фазированную решетку, которые обеспечивают последовательное излучение и прием отраженных волн, при этом вся последовательность излученных импульсов характеризуется одной и той же геометрией волновых фронтов. Такой подход имеет ряд недостатков, связанных с ограничениями на разрешающую способность, возможностью получения достаточного количества данных для точного разрешения потоков по скорости и оптимальной фокусировкой при излучении только на одной фиксированной глубине [17]. Выражение (8) дает принципиальную возможность исследования влияния динамического фокусирования на параметры конкретных доплеровских и спектрально-доплеровских ультразвуковых медицинских диагностических методик.

ВЫВОДЫ

В настоящей работе представлена общая теория, пригодная для описания альтернативной современной технологии динамического фокусирования излучаемых ультразвуковых пучков по методу синтезированной апертуры [17-19]. В соответствии с этой технологией каждый зондирующий импульс ультразвуковых волн характеризуется своей геометрией и, в частности, направлением распространения волн, а для фокусирования волн при излучении и восстановлении изображения биологического объекта используется когерентное сложение сигналов ультразвукового отклика, полученных от совокупности таких зондирующих импульсов. Полученные в настоящей работе результаты важны для понимания и совершенствования этого и родственных перспективных методов ультразвуковой визуализации, поскольку в общем виде связывают наблюдаемые спектры мощности ультразвукового доплеровского отклика с динамически изменяющейся геометрией зондирующих ультразвуковых полей.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hoskins P.R., McDicken W.N. Colour ultrasound imaging of blood flow and tissue motion // *The British journal of radiology*. – 1997. – Vol. 70. – P. 878-890.
2. Pulkovski N., Schenk P., Maffioletti N.A., Mannion A.F. Tissue Doppler imaging for detecting onset of muscle activity // *Muscle Nerve*. – 2008. – Vol. 37. – P. 638-649.
3. Wells P.N.T. Ultrasonic colour flow imaging // *Phys. Med. Biol.* – 1994. – Vol. 39. – P. 2113-2145.
4. Wells P.N.T. Doppler study of the vascular system (review) // *European Journal of Ultrasound*. – 1998. – Vol. 7. – No. 1. – P. 3-8.
5. Gao L., Alam S.K., Lerner R.M., Parker K.J. Sonoelasticity imaging: theory and experimental verification // *J. Acoust. Soc. Am.* – 1995. – Vol. 97. – P. 3875-3886.
6. Gao L., Parker K.J., Lerner R.M., Levinson S.F. Imaging of the elastic properties of tissue – a review // *Ultrasound Med. Biol.* – 1996. – Vol. 22. – P. 959-977.
7. Ophir J., Alam S.K., Garra B.S., Kallel F., Konofagou E., Krouscop T.A., Merritt C.R.B., Righetti R., Souchon R., Srinivasan S., Varghese T. Elastography: imaging the elastic properties of soft tissues with ultrasound (review article) // *J. Med. Ultrasonics*. – 2003. – Vol. 29. – P. 155-171.
8. P.J. Fish. Doppler methods // *Physical principles of medical ultrasonics* // Ed. by Hill C.R. Chichester: Ellis Horwood Limited, 1986. – P. 338-376.
9. Barannik E.A. Influence of diffraction divergence and beam width on the Doppler signal spectrum // *Sov. Phys. Acoust.* – 1992. – Vol. 38. – No. 2. – P. 127-131.
10. Barannik E.A. The Doppler signal spectrum bandwidth at pulse radiation mode // *Acoustical Physics*. – 1993. – Vol. 39. – No. 5. – P. 496-498.
11. Barannik E. A. The effect of ultrasound wave focusing on the mean-square width of the Doppler spectrum // *Acoustical Physics*. – 1994. – Vol. 40. – No. 2. – P. 188-190.
12. Skresanova I.V., Barannik E.A. Correlation functions and power spectra of Doppler response signals in ultrasonic medical applications // *Ultrasonics*. – 2012. – Vol. 52. – No. 5. – P. 676-684.
13. Barannik E.A., Matchenko O.S. Correlation function and the power spectrum of the Doppler ultrasound response signal of uniformly accelerated scatterers in fluid flow // *East Eur. J. Phys.* – 2015. – Vol. 2. – No. 1. – P. 37-41.
14. Barannik E.A., Kulibaba A.A., Girnyk S.A., Tolstoluzhskiy D.A., Skresanova I.V. Displacement spectra under isometric muscle contraction: spectral Doppler study and theoretical models of ultrasound response and muscle contraction // *J. Ultrasound Med.* – 2012. – Vol. 31. – P. 1959 – 1972.
15. Angelsen B.A.J. A theoretical study of the scattering of ultrasound from blood // *IEEE Trans. Biomed. Eng.* BME-27 – 1980 – P. 61–67.
16. Dickinson R.J., Nassiri D.K. Reflection and scattering // *Physical Principles of Medical Ultrasonic*, second ed. // Ed. by Hill C.R., Bamber J.C., terHaar G.R. – John Wiley, 2004. – P. 191–222.
17. Jensen J.A., Nikolov S.I., Gammelmark K.L., Pedersen M.H. Synthetic Aperture Ultrasound Imaging // *Ultrasonics* – 2006 – Vol. 44. – P. e5 – e15
18. Yao H. Synthetic Aperture Methods for Medical Ultrasonic Imaging – Oslo: Department of Informatics, University of Oslo, 1997.
19. Holm S., Yao H. Improved framerate with synthetic transmit aperture imaging using prefocused subapertures // 1997 IEEE Ultrasonics Symposium. – 1997.

PACS: 07.60.Dq, 23.60.+e, 23.40.-s, 89.40.Dd

RADON-222 DETECTION USING BETA-DECAY PRODUCTS**I.I. Yakimenko, N.G. Styervoyedov, A.F. Shchus, G.M. Onyshchenko***V.N. Karazin Kharkiv National University**Svobody Sq. 4, 61022, Kharkiv, Ukraine**e-mail: shchus@karazin.ua, onyshchenko.gm@karazin.ua*

Received September 23, 2015

The paper shows the possibility of determining of the radon by the radiometer on a base of multi-channel time analyzer of beta – decay products of radon. The radiometer consist of an electrostatic aerosol collector combined with the air intake, Geiger-Muller counter for detection of beta particles and multi-channel time analyzer. Accumulation time of aerosol sample takes up to 20 min, the time data processing is done by the radiometer about 5 hours. The data processing is at off-line mode using the computer decomposition process of decay spectrum.

KEYWORDS: beta activity; radiometer; Radon-222; multi-channel time analyzer**ДЕТЕКТИРОВАНИЕ РАДОНА-222 С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ БЕТА-АКТИВНЫХ ПРОДУКТОВ РАСПАДА****И.И. Якименко, Н.Г. Стервоедов, А.Ф. Щусь, Г.М. Онищенко***Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина**пл. Свободы 4, 61022, Харьков, Украина*

В работе показана возможность определения радона по его бета-радиоактивным продуктам распада с помощью радиометра на основе многоканального временного анализатора. В состав радиометра входит комбинированный электростатический сборщик аэрозолей, совмещенный с воздухозаборником, счетчик Гейгера-Мюллера для детектирования бета-частиц и многоканальный временной анализатор. Время забора пробы ~ 20 мин, измерение временных спектров распада бета-активности накопленных на фильтре аэрозолей выполняется в течение ~ 5 ч. Данные обрабатываются в режиме off-line с применением компьютерной процедуры разложения временного спектра на составные компоненты.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: бета-активность; радиометр; радон-222; многоканальный временной анализатор**ДЕТЕКТУВАННЯ РАДОНУ-222 З ВИКОРИСТАННЯМ БЕТА-АКТИВНИХ ПРОДУКТІВ РОЗПАДУ****І.І. Якименко, М.Г. Стервоедов, О.П. Щусь, Г.М. Онищенко***Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна**м. Свободи 4, 61022, Харків, Україна*

В роботі показана можливість визначення радону по його бета-радиоактивним продуктам розпаду за допомогою радіометра на основі багатоканального часового аналізатора. До складу радіометра входить комбінований електростатичний накопичувач аерозолів, поєднаний з повітрозабірником, лічильник Гейгера-Мюллера для детектування бета-частинок і багатоканальний часовий аналізатор. Час забору проби ~ 20 хв, виміри часових спектрів розпаду бета-активності накопленої на фільтрі аерозолів виконується протягом ~ 5 г. Дані обробляються в режимі офф-лайн із застосуванням комп'ютерної процедури розв'язання часового спектра на складові компоненти.

Радиоактивные аэрозоли, представляющие собой взвешенные частицы в воздухе – одна из форм радиоактивных веществ, попадающих в организм человека через его дыхательную систему. Генераторами радиоактивности атмосферного воздуха являются такие радиоактивные газы, как: Rn-222, $T_{1/2} = 3,823$ сут; Rn-220, $T_{1/2} = 55,6$ с; Rn-219, $T_{1/2} = 3,96$ с; Rn-218, $T_{1/2} = 35$ мс. Радон постоянно поступает в атмосферу из земных пород: Rn-222, Rn-218 – при альфа-распаде ядер Ra-226 и бета-распаде ядер At-218, соответственно (семейство урана-радия), Rn-220 – при альфа-распаде ядер Ra-224 (семейство тория), Rn-219 – при альфа-распаде ядер Ra-223 (семейство актиния) [1, 10-14].

При распаде радона выделяются альфа-частицы, особенно опасные при попадании в легкие человека. Не менее опасны и другие продукты распада радона – радиоактивные изотопы свинца, висмута, полония, поскольку они образуют аэрозоли, которые могут вызвать у человека поражения легких. Именно поэтому анализ изотопов радона и продуктов его распада особенно важен для медицины (радоновая терапия, радоновые ванны). Анализ также важен для радиозоологии, разведки полезных ископаемых.

Также радиоактивными являются дочерние продукты распада наиболее долгоживущего изотопа радон-222, обладающие свойством осаждаться на аэрозольных частицах, делая их радиоактивными: Po-218 (3,10 мин), Pb-214 (26,8 мин), Bi-214 (19,9 мин), Po-214 (0,164 мс), Pb-210 (22,3 года), Bi-210 (5,013 сут), Po-210 (138,38 сут). Такие аэрозоли эквивалентны “горячим частицам” радиоактивной пыли черномыльских осадков [1]. Иногда эти негазообразные продукты называют «активным налётом». Концентрация радона (Rn-222) в воздухе составляет около $10 \cdot 10^{-3}$ Бк/л; торона (Rn-220) – около $27 \cdot 10^{-4}$ Бк/л, а концентрация их продуктов распада составляет в среднем $5 \cdot 10^{-3}$ Бк/л [2]. Изотоп Rn-222 дает примерно 50-55% дозы облучения, которую ежегодно получает каждый житель Земли, изотоп Rn-220 прибавляет к этому еще ~5-10%.

Завышенные концентрации радона обнаруживаются не только в подземных выработках, но и в жилых

домах, в офисах. Концентрация радона в закрытых помещениях в среднем примерно в 5 - 8 раз выше, чем в наружном воздухе. Поскольку плотность радона ($9,81 \text{ мг/см}^3$) почти в 8 раз выше плотности воздуха ($1,293 \text{ мг/см}^3$), он накапливается в больших количествах в цокольных помещениях, подвалах и на первых этажах зданий. Относительный вклад в формирование "радоновой нагрузки" в зданиях следующий: грунт под зданием и стройматериалы – 78%; наружный воздух – 13%; вода, используемая в доме – 5%; природный газ – 4% [2-4].

Достоверная регистрация изотопов радона в смеси газов – сложная и до сих пор до конца не решённая задача [5]. Особенно значительные трудности возникают в связи с невысокой адсорбцией радона воздушными фильтрами, самопоглощением альфа-частиц в фильтрах. Для количественного определения изотопов радона также необходимо иметь объёмные эталоны радиоактивных газов, однако создание их необычайно трудно даже для сравнительно долгоживущего изотопа – радона-222.

К наиболее известным методам регистрации радона и продуктов его распада можно отнести трековые, термолюминесцентные методы, а также методы с использованием поверхностно-барьерных детекторов. Чаще всего они используются для регистрации альфа-частиц, испускаемых как радоном, так и продуктами его распада. Следует заметить, что трековые методы требуют больших времен экспозиций (от нескольких дней до нескольких недель), альфа-спектрометрия – требует полупроводниковых детекторов большой площади.

Также в литературе известны методики оценки радиоактивности аэрозолей воздуха по измерению гамма и бета-излучения продуктов распада [6-8]. В этих работах регистрация продуктов распада радона осуществляется, как правило, с применением как временного, так и амплитудного анализа. Однако рассмотренные методики преследуют, в основном, учебные цели, и не обладают, на наш взгляд, достаточной надёжностью анализа именно радона.

Следует заметить, что повышение надёжности и чувствительности методик определения радона возможно за счет применения более эффективных пробоотборников, содержащих многослойные фильтры для регистрации бета-аэрозолей – продуктов распада радона. Также повышению надёжности способствует применение временного анализа с последующей многокомпонентной обработкой.

В настоящей работе рассматривается радиометр для регистрации радона-222 и бета-активных аэрозолей – продуктов распада радона-222. В качестве детектора бета-частиц применялся счетчик Гейгера-Мюллера СТС-5. Особенностью радиометра является воздухозаборник аэрозолей, совмещенный конструктивно с электростатическим ионизационным узлом. Продукты распада, будучи положительно заряженными, могут быть подвергнуты электростатическому осаждению. Положительный заряд иона дочернего продукта обусловлен ионизацией оболочки вылетающей альфа-частицей, также возможна ионизация за счет кинетической энергии ядра отдачи. Кроме того, также возможна ионизация радона-222 в коронном разряде электростатического ионизирующего накопителя. Известно, что радон, будучи нейтральным газом, обладает заметной сорбцией только на поверхности активированного угля [9], поэтому использование электростатического накопителя будет способствовать накоплению ионов радона-222 на фильтре.

Пробоподготовка осуществляется воздухозаборником, совмещенным с электростатическим накопителем, расположенным вдоль продольной оси воздухозаборника. Система воздушной продувки производительностью $30 \text{ дм}^3/\text{мин}$ имеет автономное питание. Коллектор ионов радона-222 и "активного налёта" площадью $\sim 500 \text{ см}^2$ размещается на внутренней стенке трубки диаметром 70 мм и длиной 300 мм. По оси трубки закреплена металлическая струна, на которую подается высокий положительный потенциал $U = 2 \text{ кВ}$, который отталкивает ионы на внутреннюю стенку коллектора. На струне закреплена проволочная игольчатая "шуба" для эффективной ионизации воздушного потока.

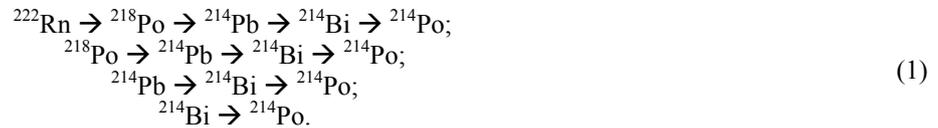
Также отличительной особенностью данного радиометра является использование временного анализатора для измерения бета-активности продуктов, находящихся в помещении в равновесии до начала накопления и попавших на фильтр из воздуха (это Po-218, Pb-214, Bi-214), а также продуктов распада радона-222, попавшего на фильтр из воздуха и генерирующих те же продукты (Po-218, Pb-214, Bi-214) в течение времени измерения ($\sim 5 \text{ ч}$).

Многокомпонентная подгонка экспериментального распадного спектра экспоненциальными функциями позволяет проводить идентификацию зарегистрированных составных продуктов по периоду полураспада и, в конечном счете, идентификацию радона-222. Временной анализатор выполнен на микроконтроллере AVR MSP430, усилитель-формирователь с цепью гашения вторичных (паразитных) сигналов, регулируемый источник высокого напряжения (260-600 В). Также имеется модуль памяти, жидкокристаллический дисплей, USB-порт вывода данных, контроллер батареи. Программное обеспечение создано в среде Energia IDE и включает в себя библиотеки контроля вывода информации на дисплей, модуль счета импульсов, контроль клавиатуры, счетный код, USB-библиотеку. Общая масса прибора с аккумуляторной батареей – около 1 кг.

Цель работы - показать возможность идентификации радона Rn-222 при использовании созданного бета-радиометра на основе многоканального временного анализатора, комбинированного накопителя аэрозолей и методики обработки распадных кривых альфа- и бета-активных аэрозолей – продуктов распада радона-222.

МЕТОДИКА ОБРАБОТКИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

В работе предполагается, что активность фильтра определяется, в основном, накопленными воздухозаборником продуктами распада наиболее распространенного изотопа радона Rn-222 – ^{218}Po ($T_{1/2} = 3,17$ мин), ^{214}Pb ($T_{1/2} = 26$ мин) и ^{214}Bi ($T_{1/2} = 19,8$ мин), которые находятся в равновесном состоянии в воздухе. Также учитывались продукты распада радона-222, который также накапливается в воздухозаборнике в течение времени накопления пробы и распадаясь, увеличивает конечную активность:



Изотопы, находящиеся в цепочке распада правее ^{214}Po , в расчет не принимались в связи с тем, что ^{214}Po – альфа-излучатель, а продукт его распада ^{210}Pb имеет значительный период полураспада – $T_{1/2} = 22,3$ г.

Распад изотопов, накопленных на фильтре, можно описать следующей системой уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3, \\ \frac{dN_4}{dt} &= \lambda_3 N_3 - \lambda_4 N_4 \end{aligned} \quad (2)$$

где N_1, N_2, N_3, N_4 – число радиоактивных ядер $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}, ^{214}\text{Pb}, ^{214}\text{Bi}$ соответственно.

Решение системы уравнений (2) дает следующие выражения:

$$N_1(t) = N_1(0)e^{-\lambda_1 t}, \quad (3)$$

где $N_1(0)$ – находившийся в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{222}Rn ;

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_1(0)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] + N_2(0)e^{-\lambda_2 t}, \quad (4)$$

где $N_2(0)$ – находившийся в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{218}Po , $N_2(t)$ – полное количество ядер изотопа ^{218}Po с учетом подпитки при распаде ^{222}Rn , попавшего на фильтр;

$$N_3(t) = \frac{\lambda_2 \lambda_1 N_1(0)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left[\frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_3 - \lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_3 - \lambda_2)} \right] + \frac{\lambda_2 N_2(0)}{(\lambda_3 - \lambda_2)} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_3 t}) + N_3(0)e^{-\lambda_3 t}, \quad (5)$$

где $N_3(0)$ – находившийся в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{214}Pb , $N_3(t)$ – полное количество ядер изотопа ^{214}Pb с учетом подпитки при распаде ^{222}Rn и ^{218}Po , попавших на фильтр;

$$\begin{aligned} N_4(t) = & \frac{\lambda_2 \lambda_1 \lambda_3 N_1(0)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left[\frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left(\frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)} \right) - \frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_3)} \left(\frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)} - \frac{e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_3)} \right) \right] + \\ & + \frac{\lambda_2 \lambda_3 N_2(0)}{(\lambda_2 - \lambda_3)} \left[\frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)} - \frac{e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_3)} \right] + \frac{\lambda_2 N_3(0)}{(\lambda_4 - \lambda_2)} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}) + N_4(0)e^{-\lambda_4 t}, \end{aligned} \quad (6)$$

где $N_4(0)$ – накопленный в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{214}Bi , $N_4(t)$ – полное количество ядер изотопа ^{214}Bi с учетом подпитки при распаде ядер $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}$ и ^{214}Pb , попавших на фильтр.

На рис. 1 приведены результаты измерения и анализа активной пробы, накопленной на фильтре за интервал времени 20 мин. Активность источника A связана с количеством радиоактивных ядер N , временем жизни $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ следующим образом: $A = -dN/dt = \lambda N$. Определив эффективность установки k , которая включает в себя эффективность детектирования, квантовый выход частиц на распад, геометрию эксперимента (телесный угол), вероятность поглощения и рассеяния в толще образца, мертвое время установки (просчеты) и вычислив параметры распадной кривой N_{10}, N_{20}, N_{30} и N_{40} , можно определить активности ядер $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}, ^{214}\text{Pb}, ^{214}\text{Bi}$ в пробе в начальный момент времени, т.е. в момент начала забора пробы. Зная производительность воздухозаборника, можно оценить активность аэрозолей в помещении: $A_{0i} = kN_{0i} \ln 2 / T_{1/2}$.

Анализ компонент и определение начальных количеств ядер N_{0i} выполнялся подгонкой модельной кривой, являющейся суммой расчетных количеств ядер на фильтре ($N_1(t), ^{222}\text{Rn}$) + ($N_2(t), ^{218}\text{Po}$) + ($N_3(t), ^{214}\text{Pb}$) + ($N_4(t), ^{214}\text{Bi}$), к экспериментальным данным. В качестве критерия качества подгонки использовалось выражение:

$$\chi^2/n = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{N_{i,exp} - N_{i,th}}{\delta(N_{i,exp})} \right)^2, \quad (7)$$

где n – число экспериментальных точек; N_{exp} – зарегистрированные импульсы; $\delta(N_{exp})$ – абсолютная погрешность отдельного измерения, $\delta_i = \sqrt{N_{i,exp}}$.

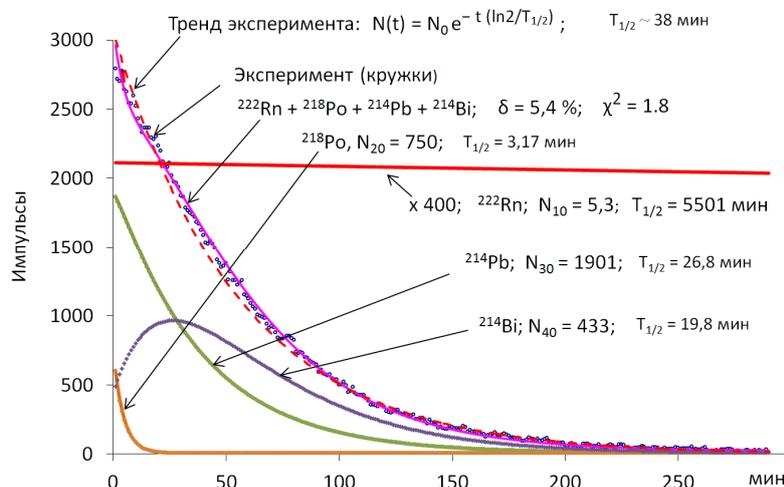


Рис. 1. Результаты измерения фильтра радиометром и обработка.

По вертикальной оси отложено число зарегистрированных детектором событий, ось абсцисс – время обработки радиометром аэрозольной пробы. N_{i0} – расчетные начальные количества событий. $T_{1/2} \sim 38$ мин – эффективный период полураспада суммарной активности фильтра.

В процессе подгонки варьировались коэффициенты при экспоненте N_1, N_2, N_3 и N_4 , т.е. начальные количества радиоактивных ядер на фильтре. При этом постоянные распада $\lambda_1 \div \lambda_4$ изотопов ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi оставались фиксированными. В результате подгонки были получены следующие значения начальных количеств радиоактивных ядер компонент (амплитуды) на фильтре: $N_{10}=N_1(0)$ (^{222}Rn) = 5,3; $N_{20} = N_2(0)$ (^{218}Po) = 750; $N_{30} = N_3(0)$ (^{214}Pb) = 1901; $N_{40} = N_4(0)$ (^{214}Bi) = 433. Отношение начальных количеств ядер $^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi}$ для исследуемого помещения составило 4,4:1. Относительная погрешность подгонки, оцененная на основе среднеквадратичной погрешности по спектру (СКО) выражением

$$\delta_x = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^n N_{i,exp}}} \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (N_{i,exp} - N_{i,th})^2}, \quad (8)$$

составила 5,4%, нормированный $\chi^2/n = 1,8$.

Анализ результатов измерений и кривых распада указывает на присутствие в фильтре (а значит, в аэрозолях) бета-активных изотопов радона Pb-214 : $N_{30} = N_3(0) = 1901$; ($T_{1/2} = 26,8$ мин) и Bi-214 : $N_{40} = N_4(0) = 433$ ($T_{1/2} = 19,8$ мин). Кроме того, расчеты подтверждают присутствие на фильтре аэрозолей альфа-излучателей Rn-222 ($T_{1/2} = 3,83$ д) и Po-218 ($T_{1/2} = 3,17$ мин), содержащихся в аэрозолях помещения. Учет этих изотопов, которые испытывают распад уже после окончания забора пробы, т.е. в течение времени измерений, приводит к заметному улучшению согласия модельной и экспериментальной кривой. Исключение из анализа изотопа ^{222}Rn приводит к ухудшению качества подгонки, при этом значение СКО возрастает до 6,7%, а $\chi^2/n = 6,5$, что указывает на заметную чувствительность радиометра к присутствию аэрозолей альфа-излучателя Rn-222 на фильтре.

ВЫВОДЫ

Результаты представленной работы указывают на возможность измерения радиометром рассмотренной конструкции загрязненности закрытых помещений Rn-222 по бета-активным аэрозолям, образующихся в процессе его распада. Совместное измерение и анализ распадных кривых бета-аэрозолей (Bi-214 , Pb-214) и альфа-аэрозолей (Rn-222 , Po-218) повышает надежность идентификации радона Rn-222 в помещении.

Применение в составе радиометра комбинированного накопителя аэрозолей, многоканального временного анализатора, представленной методики разложения накопленного временного спектра на составные компоненты позволило за время накопления аэрозольной пробы ~ 20 мин и интервал измерений $\sim 5-6$ часов уверенно выделить основные компоненты кривой распада альфа- и бета-аэрозолей Rn-222 , получить статистическую погрешность δ суммарного количества импульсов детектора от бета-активных аэрозолей менее 0,3% :

$$\delta = 1 / \sqrt{N_{\text{exp}} \cdot n \cdot N_{\text{exp}}} = (\sum N_{i, \text{exp}}) / n.$$

В заключение выражаем глубокую благодарность профессору ХНУ имени В.Н. Каразина Егоренкову В. Д. за проявленный интерес к данной работе и полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Grigoriev I., Meilikhov E., Radzig A. Handbook of Physical Quantities, 1996. – 1568 P.
2. Malahovskij V.N. Radon i toron v pomeshhenijah. Ocenka opasnosti i radiacionnaja zashhita personala i naselenija. - Sankt-Peterburg, 1999. (in Russian)
3. Skolotnev B.N. Radon v kvartire - problema dlja zdorov'ja, <http://ipulsar.net/newsnew-239.html>. (in Russian)
4. Rakov Je.G. Radioaktivnost' u nas doma: problema radona // Himija.– 1999.– No 16. (in Russian)
5. Djurrani S., Ball R. Tverdotel'nye jadernye detektory. – Moskva: Energoatomizdat, 1990. – 264s. (in Russian)
6. Jovanovic P. Radon exhalation rate measurements on and around the premises of a former coal mine. Radon in the Living // Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece. P.429-432.
7. Jakovleva V.S., Vukolov A.V. Sposob izmerenija plotnosti potoka radona s poverhnosti grunta po beta- i gamma-izlucheniju (RU 2428715). (in Russian)
8. Austen D., Brouwer W. Radioactive balloons: experiments on radon concentration in schools or homes // Phys. Educ.– 1997.– Vol. 32.– P.97. doi:10.1088/0031-9120/32/2/0161997.
9. Vdovenko V.M. Sovremennaja radiohimija. – Moskva: Atomizdat, 1969. – 544 s. (in Russian)
10. Barsukov O.A. Osnovy fiziki atomnogo jadra. Jadernye tehnologii. - M.: Fizmatlit, 2011. - 560 s. (in Russian)
11. Zashhita ot radona-222 v zhilyh zdaniyah i na rabochih mestah: Publikacija 65 MKRZ / Per. s angl. - M.: Energoatomizdat, 1995. – 78s. (in Russian)
12. Ruzer L.S. Radioaktivnye aerizoli. - M.: Energoatomizdat, 2001. - 232 s. (in Russian)
13. Serdjukova A.S., Kapitanov Ju.T. Izotopy radona i korotkozshivushhie produkty ih raspada v prirode. - 2-e izd., dop. i pererab. - M.: Atomizdat, 1975. - 295 s. (in Russian)
14. Sidel'nikova O.P., Stefanenko I.V., Sokolov P.Je. Radiacionnaja bezopasnost' v zdaniyah: spravochnik. - M.: Energoatomizdat, 2006. - 328 s. (in Russian)

Юрій Анатолійович Бережної
(до 80-річчя від дня народження)



27 травня 2016 року виповнилося вісімдесят років відомому українському фізику-теоретику, фахівцю в галузі ядерної фізики, заслуженому діячеві науки і техніки України, заслуженому професору Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна, лауреату премій НАН України імені О.С. Давидова і К.Д. Синельникова, професору кафедри теоретичної ядерної фізики та вищої математики ім. О.І. Ахієзера, доктору фізико-математичних наук Юрію Анатолійовичу Бережному.

Ю.А. Бережной народився 27 травня 1936 г. в родині вчених. Хоча його шкільні роки припали на важкі воєнні та повоєнні роки, у нього рано проявився інтерес до фізики та математики, що привів його 1953 року на ядерне відділення фізико-математичного факультету Харківського держуніверситету.

Після закінчення ХДУ в 1958 р. Ю.А. Бережной працював до Українського фізико-технічного інституту (УФТІ) в теоретичний відділ О.І. Ахієзера, в якому він пропрацював понад двадцять років. З 1979 р. по 2010 р. (тридцять один рік!) Ю.А. Бережной працював у ХНУ імені В.Н. Каразіна завідувачем кафедри теоретичної ядерної фізики, на теперішній час він продовжує викладати і вести наукову роботу на цій самій кафедрі на посаді професора.

Свою наукову діяльність Ю.А. Бережной почав під керівництвом видатного фізика-теоретика О.Г. Ситенка. Його перші дослідження були присвячені розвитку дифракційної моделі ядерного розсіяння, в ході яких було здобуто низку оригінальних результатів із теорії дифракційної взаємодії нуклонів і дейтронів, зокрема, з несферичних ядрами. Деякі з цих робіт були виконані спільно з відомим фізиком-ядерником Є.В. Інопіним. На основі цих досліджень Ю.А. Бережной було підготовлено і в 1965 році успішно захищено кандидатську дисертацію. Протягом наступного десятиліття Ю.А. Бережной продовжив розвиток дифракційної теорії взаємодії складних частинок із ядрами.

З 1965 р. він почав педагогічну діяльність - читати лекції з теоретичної ядерної фізики в ХДУ і працювати з аспірантами. Зі своїми учнями М.В. Євлановим, О.П. Созніком, М.А. Шляховим і В.П. Вовенком Ю.А. Бережной здобув низку нових результатів із теорії реакцій розщеплення дейтрона і реакцій передачі нуклона, з дифракційної теорії процесів з порушенням колективних станів ядер мішені і розвинув теоретичні моделі пружного і непружного розсіяння протонів і дейтронів високих енергій на основі теорії багаторазового дифракційного розсіювання (ТБДР) Глаубера-Ситенка.

З середини 70-х років Ю.А. Бережной зайнявся розвитком дифракційної теорії поляризаційних явищ при пружному і непружному розсіюванні нуклонів ядрами. У цих роботах спільно з учнями М.А. Шляховим, О.П. Созніком, Г.О. Хоменком і О.С. Молевим йому вдалося пояснити поведінку диференціальних перерізів і повного набору поляризаційних спостережуваних у пружному і непружному р-А розсіянні.

1978 року Ю.А. Бережной успішно захистив докторську дисертацію. 1983 року йому було присвоєно вчене звання професора. Наприкінці 70-х – на початку 80-х років Ю.А. Бережной зі своїм учнем В.В. Пилипенком виконав низку робіт із дифракційної теорії зарядово-обмінних реакцій за участю нуклонів і найлегших ядер. В цей самий період спільно з ядерниками-експериментаторами О.П. Ключаревим і Н.Я. Руткевич Ю.А. Бережной виконав роботи з багаточастинкових реакцій за участю легких ядер.

З початку 80-х років Ю.А. Бережной приступив до вивчення рефракційних ефектів типу ядерної веселки при розсіянні легких ядер проміжних енергій. Він залучив до цієї роботи В.В. Пилипенка, а також ядерників-експериментаторів з ХДУ А.В. Кузніченка і Г.М. Онищенко, яким удалося одними з перших в СРСР здійснити вимірювання таких ефектів. Було розвинено S-матричний підхід для аналізу райдужного розсіяння ядер у пружних і квазіпружних процесах, передбачений ефект ядерної райдуги в реакції перезарядки (^3He , ^3H), пізніше виявлений експериментально групою А.А. Оглобліна.

Важливим напрямком досліджень Ю.А. Бережного в цей період був розвиток мікроскопічної теорії поляризаційних явищ при пружному і непружному розсіюванні протонів високих енергій ядрами на основі ТБДР. Зі своїми учнями О.П. Созніком, Г.А. Хоменком, В.В. Пилипенком, О.С. Молевим і І.М. Кудрявцевим він виконав низку робіт, присвячених кількісному опису повного набору спінових спостережуваних для даних процесів. Були встановлені зв'язки між різними спіновими спостережуваними і низку правил відбору і правил фаз спостережуваних. Значне число робіт Ю.А. Бережного присвячено дослідженню впливу кластеризації в легких ядрах на процеси ядерного розсіяння, включаючи поляризаційні явища. Ю.А. Бережной разом із Г.О. Хоменком, В.В. Пилипенком і В.П. Михайлюком розвинув мікроскопічний підхід, заснований на альфа-кластерній моделі з дисперсією для низки легких ядер, з успіхом застосований для опису розсіювання електронів, протонів, антипротонів і піонів на цих ядрах, а також зіткнень двох альфа-кластерних ядер.

У 90-ті роки Ю.А. Бережной повернувся до проблеми опису реакцій за участю малонуклонних ядер з урахуванням їх внутрішньої структури. Спільно з В.Ю. Кордою ним запропоновано загальну теорію дифракції процесів за участю дво- і тринуклонних ядер і кластерних ядер літїю з урахуванням розмиття поверхні ядер-мішеней і поверхневого заломлення розсіюваних хвиль. Створений підхід опису дифракційного розсіювання дво- і тринуклонних ядер ядрами також далі був удосконалений у роботах В.Ю. Корди, Ю.А. Бережного та його аспіранта А.Г. Гаха. Разом із О.І. Ахієзером, О.П. Созніком і аспірантом В.А. Сліпком Ю.А. Бережной розвинув теорію реакцій дво- і одонуклонної передачі та інклюзивних реакцій зриву за участю тринуклонних ядер у діапазоні проміжних енергій. Далі (спільно з В.А. Сліпком) цю теорію було узагальнено для опису поляризаційних характеристик нуклонів, що звільняються в реакціях зриву.

Ю.А. Бережной є автором 260 наукових робіт, 17 монографій і навчальних посібників із ядерної фізики і квантової механіки, в тому числі підручників "Теорія ядерних реакцій" (2011 р.), "Лекції з квантової механіки" (2014 р.), монографії "Дифракційні ядерні процеси" (2014 р.). Три з них написані в співавторстві з академіком О.І. Ахієзером.

Ю.А. Бережної вніс значний вклад у підготовку українських фізиків-теоретиків у галузі ядерної фізики. За роки роботи в ХФТІ і Харківському університеті ним підготовлено тринадцять кандидатів наук, сім з них стали докторами наук. Ю.А. Бережної багато років є членом спеціалізованої ради із захисту докторських дисертацій з ядерної фізики. Він є членом наукової ради НАН України «Ядерна фізика та ядерна енергетика», членом редколегії «Східно-європейського фізичного журналу».

2000 року наукові роботи Ю.А. Бережного були відзначені премією ім. О.С. Давидова НАН України, а 2016 року - премією НАН України ім. К.Д. Синельникова за цикл робіт «Теорія дифракційних ядерних процесів» спільно з В.П. Михайлюком і В.В. Пилипенком. 2016 року Ю.А. Бережному присвоєно почесне звання "Заслужений діяч науки і техніки України".

Крім робіт у галузі теоретичної ядерної фізики, Ю.А. Бережної з 80-х років публікує також роботи з проблем філософії науки та історії фізики. У його статтях розглядаються філософські аспекти квантової механіки і теорії елементарних частинок, питання методології наукового пізнання.

Ю.А. Бережної має заслужений авторитет серед філософів ХНУ імені В.Н. Каразіна, він був членом спеціалізованої ради із захисту докторських дисертацій із філософії. Свій величезний викладацький досвід Ю.А. Бережної узагальнив у низці публікацій, присвячених методиці викладання фізики в університеті та середній школі. Він також опублікував низку науково-популярних статей. 2005 року за багаторічну плідну роботу Ю.А. Бережному присвоєно почесне звання "Заслужений професор Харківського національного університету". Він неодноразово перемагав в університетських конкурсах серед викладачів, у обласному конкурсі «Вища школа Харківщини – кращі імена».

Наукова громадськість України і багатьох зарубіжних країн удячна професору Ю.А. Бережному за випускників кафедри і факультету, які плідно працюють в науці.

Ми високо цінуємо Ваші високі людські якості, відданість науці, життєву мудрість, чуйне ставлення до учнів і колег. Сердечно вітаємо Вас, Юрію Анатолійовичу, з ювілеєм, зичимо Вам міцного здоров'я, щастя, благополуччя і великих творчих досягнень.

*І.М. Адаменко, М.О. Азаренков, О.С. Бакай, В.С. Бакіров, І.О. Гірка, А.М. Довбня, І.М. Карнаухов,
В.О. Катрич, Ю.О. Кірючкін, В.Ф. Клепиков, А.М. Кондратенко, В.М. Куклін,
С.В. Пелетмінський, Ю.М. Ранюк, В.Д. Ходусов, М.Ф. Шульга*

blank line)

(blank line)

PACS: Here you must specify PACS codes

(blank line)

INSTRUCTIONS FOR PREPARING MANUSCRIPT (TITLE)

(blank line)

N.N. Author¹, N.N. Co-author(s)²

¹*Affiliation*

²*Affiliation (if different from Authors affiliation)*

e-mail: corresponding_authors@mail.com

Received January 14, 2014

(blank line)

Each paper must begin with an abstract. The abstract should be typed in the same manner as the body text (see below). Please note that these Instructions are typed just like the manuscripts should be. The abstract must have at least 500 phonetic symbols, supplying general information about the achievements, and objectives of the paper, experimental technique, methods applied, significant results and conclusions. Page layout: the text should be printed on the paper A4 format, at least 3 pages, with margins of: Top - 3, Bottom, Left and Right - 2 cm. The abstract should be presented in English (only for foreign authors), Ukraine and Russian.

KEYWORDS: there, must, be, at least, 5 keywords

(blank line)

This is introduction section. This paper contains instructions for preparing the manuscripts. The text should be prepared in .doc format (using MS Word).

(blank line)

INSTRUCTIONS

The text should be typed as follows:

- title: Times New Roman, 12 pt, ALL CAPS, bold, 1 spacing, centered;
- authors: name, initials and family names; Times New Roman, 12 pt, bold, 1 spacing, centered;
- affiliation(s): Times New Roman, 9 pt, italic, 1 spacing, centered;
- abstract: Times New Roman, 9 pt, 1 spacing, justified;
- body text: Times New Roman, 10 pt, 1 spacing, justified; paragraphs in sections should be indented right (tabulated) for 0.75 cm;
- section titles: Times New Roman, 10 pt, bold, 1 spacing, centered, without numbering, one line should be left, blank above section title;
- subsection titles: Times New Roman, 10 pt, bold, 1 spacing, centered, without numbering in accordance to the section (see below), one line should be left blank above subsection title;
- figure captions: width of the figure should be 85 or 170 mm, figures should be numbered (Fig. 1) and titled below figures using sentence format, Times New Roman, 9 pt, 1 spacing, centered (if one line) or justified (if more than one line); one line should be left blank below figure captions;
- table captions: width of the table should be 85 or 170 mm, tables should be numbered (Table 1.) and titled above tables using sentence format, Times New Roman, 10 pt, 1 spacing, centered (if one line) or justified (if more than one line), tables should be formatted with a single-line box around the outside border and single ruling lines between rows and columns; one line should be left blank below tables;
- equations: place equations centered, numbered in Arabic (1), flush right, equations should be specially prepared in MathType; one line should be left blank below and above equation.

(blank line)

Additional instructions

Numerated figures and tables should be embedded in your text and placed after they are cited. Only black and white drawings and sharp photographs are acceptable. Letters in the figures should be 3 mm high. The figures should be presented in one of the following graphic formats: jpg, gif, pcx, bmp, tif.

(blank line)

REFERENCES

Titles of journals, articles and author names in references should be given in Roman script. References should be numbered in the order of referring in the text, e.g. [1], [2-5], etc. Do not superscript your reference numbers. Cite references as in journal format. The full references should be listed in numerical order of citation in the text at the end of the paper (justified), Times New Roman, 9 pt, 1 spacing. References should be given in the following form:

Journals

1. Holzwarth G., Eckart G. Fluid-dynamical approximation for finite Fermi systems // Nucl. Phys. - 1979. - Vol. A325. - P.1-30.

Books

2. Bertsch G.F., Broglia R.A. Oscillations in finite quantum systems. Ch. 6. - Cambridge: Cambridge University, 1994. - 150 p.

Chapters

3. Van der Woude A. The electric giant resonances // Electric and magnetic giant resonances in nuclei / Ed. by J. Speth. - Singapore: World Scientific P.C., 1991. - P. 99-232.

Conference or symposium proceedings

4. Smolanzuk R., Skalski J., Sobiczewski A. Masses and half-life of superheavy elements // Proc. of the International Workshop 24 on Gross Properties of Nuclei and Nuclear Excitations / Ed. by H. Feldmeier et al. - GSI, Darmstadt, 1996. - P.35-42.

Special Notes

1. Use International System of Units (SI system).
2. It is undesirable to use acronyms in the titles. Please define the acronym on its first use in the paper.
3. Refer to isotopes as ¹⁴C, ³H, ⁶⁰Co, etc.

Наукове видання

СХІДНО-ЄВРОПЕЙСЬКИЙ ФІЗИЧНИЙ ЖУРНАЛ

Том 3 Номер 2

EAST EUROPEAN JOURNAL OF PHYSICS

Volume 3 Number 2

Збірник наукових праць
англійською, українською, російською мовами

Коректор – Коваленко Т.О.
Технічний редактор – Гірник С.А.
Комп'ютерне верстання – Гірник С.А.

Підписано до друку 2.06.2016. Формат 60×84 /8. Папір офсетний.

Друк ризографічний.

Ум. друк. арк. 11,1. Обл.-вид. арк. 8,9
Тираж 300 пр. Зам. № Ціна договірна

61022, Харків, майдан Свободи, 4
Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
Видавництво

Надруковано Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна
61022, Харків, майдан Свободи, 4, тел. +380-057-705-24-32
Свідоцтво суб'єкта видавничої справи ДК № 3367 від 13.01.09