

02;10;11;12

Измерение изотопного состава водорода в углеродных материалах на основе спектроскопии пиков упругорассеянных электронов

© В.П. Афанасьев, М.В. Афанасьев, А.А. Лисов, А.В. Лубенченко

Московский авиационный технологический институт — Российский государственный технологический университет им. К.Э. Циолковского,
121552 Москва, Россия
e-mail: electron_inform@mail.ru

(Поступило в Редакцию 10 сентября 2008 г. В окончательной редакции 12 декабря 2008 г.)

Восстановлен количественный состав изотопов водорода и гелия в приповерхностных слоях конструктивных материалов на основе развитой методики обработки энергетических спектров электронов рассеянных плоскопараллельными слоями твердых тел в заданный элемент телесного угла. Речь идет о спектрах, измеренных с высоким энергетическим разрешением: $\Delta E \simeq 0.2-0.4$ eV. Исследуется изменение формы пиков упругорассеянных электронов в зависимости от энергии зондирующего пучка электронов и геометрии эксперимента. Теория рассеянных электронов в плоскопараллельных слоях твердых тел строится на основе решения граничной задачи для уравнения переноса методами инвариантного погружения. В малоугловом приближении найдено аналитическое решение системы уравнений для функций отражения и пропускания. Произведено сравнение расчетов с экспериментальными данными по рассеянию электронов на полиэтилене. Прогнозируется вид энергетических спектров рассеяния электронов на дейтерии и тритии. Анализируется вопрос о пороге чувствительности метода к величине процентного содержания изотопов водорода в углеводородах.

PACS: 68.49.Jk, 25.30.Bf, 34.50.Bw

Введение

Энергетические спектры электронов, отраженных в единичный элемент телесного угла, содержат исчерпывающую информацию о послыном и компонентном составе поверхности исследуемой мишени. Электронная спектроскопия, являясь неразрушающим методом анализа поверхности, дает возможность выполнения исследований динамики послыных изменений исследуемых материалов *in situ*. Основное внимание в настоящей работе сосредоточено на электронах, которые в процессе многократного упругого рассеяния избежали неупругих столкновений. Такие частицы формируют в спектре пик упругорассеянных электронов [1–9].

В настоящей работе создается методика обработки спектров электронов, рассеянных плоскопараллельным слоем материала в данный элемент телесного угла с целью определения процентного состава изотопов водорода в приповерхностных слоях. При однократном упругом рассеянии электрона на ядре, в силу законов сохранения энергии и импульса происходит изменение энергии, определяемое формулой:

$$E = E_0 - (2m/M)(1 - \cos \theta)E_0 + 2(u \cos \vartheta/v)E_0, \quad (1)$$

где E — энергия рассеянного электрона, E_0 — энергия электронов в зондирующем пучке, m — масса электрона, M — масса атома мишени, θ — угол рассеяния электрона, v — скорость налетающего электрона, u — скорость атома мишени, ϑ — угол между вектором скорости атома мишени и внешней нормалью к поверхности

мишени. В формуле (1) пренебрегается слагаемыми, содержащими множители $(\frac{m}{M})^k$, где $k > 1$.

Впервые энергетический сдвиг пика упругоотраженных электронов, определяемый вторым слагаемым формулы (1), был измерен в работе [1], где было описано и экспериментально исследовано уширение упругого пика за счет теплового движения атомов мишени, уширение, определяемое последним слагаемым формулы (1). Первые эксперименты по измерению пика электронов упругорассеянных на протонах, при прохождении через тонкие пленки углеводородов, выполнены в работах [2–4]. В публикациях проводится аналогия электронного спектра с сигналом, наблюдаемым в эффекте Комптона. Расщепление пиков упругоотраженных от многокомпонентных материалов электронов наблюдалось в работе [5]. Особенности процесса экспериментального измерения пиков упругоотраженных электронов обсуждаются в работе [6]. Пик упругоотраженных от водорода электронов измерен в [7,8].

В работах [2–4] отмечается хорошее качественное соответствие измеряемых спектров с оценками, выполненными в рамках модели упругого однократного рассеяния. В экспериментах по рассеянию на углеводородных пленках [2–4] толщина пленок была порядка средней длины свободного пробега электрона между упругими соударениями, в работе [7] измерялся пик электронов упругоотраженных от полубесконечной мишени. Отмеченные обстоятельства указывают, что для точных количественных расчетов интенсивности пиков, сформированных электронами, рассеянных на водороде

и углероде, необходим точный учет многократных рассеяний.

Теоретический анализ

Интерпретация результатов спектроскопии упругоотраженных электронов строилась как на базе аналитических теорий, так и на основе программ монтекарловского моделирования. Подавляющее большинство аналитических подходов к описанию энергетических спектров и угловых распределений упругоотраженных электронов строится на предположении о независимости процессов упругого и неупругого каналов многократного рассеяния электронов в твердом теле. Это предположение приводит к формуле, представленной впервые Тугардом и Зигмундом [10]:

$$R, T(\Delta, \Omega_0, \Omega) = \int_0^{\infty} dr R, T(r, \Omega_0, \Omega) T_{\text{in}}(r, \Delta). \quad (2)$$

Здесь $R, T(x, \Delta, \Omega_0, \Omega)$ — функции отражения и пропускания; $R, T(x, r, \Omega_0, \Omega)$ — распределения по длинам пробегов r в мишени атомных частиц, отраженных от плоскопараллельной мишени и прошедших сквозь нее (функции $R, T(x, r, \Omega_0, \Omega)$ представляют собой решение чисто упругого уравнения переноса), $T_{\text{in}}(r, \Delta)$ — функция Ландау [11], описывающая энергетический спектр неупругих потерь электронов, прошедших путь r . Представим функцию Ландау в виде ряда по кратностям неупругого рассеяния [12]:

$$T_{\text{in}}(r, \Delta) = e^{-r/l_{\text{in}}} \sum_{k=0}^{\infty} I_k(\Delta) \frac{(r/l_{\text{in}})^k}{k!}, \quad (3)$$

где

$$I_0(\Delta) = g(\Delta); \quad I_1(\Delta) = \omega_{\text{in}}(\Delta)/\sigma_{\text{in}};$$

$$I_k(\Delta) = \int_0^{\Delta} I_{k-1}(\Delta) I_1(\Delta) d\Delta, \quad k > 1.$$

Вид функции $g(\Delta)$, который учитывает упругие потери энергии $\Delta - \xi E_0$ и уширение σ_T , определяемое тепловым движением ядер, от которых отражаются электроны, в соответствии с [1] определяется формулой:

$$g(\Delta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(\Delta - \xi E_0)^2}{2\sigma^2}\right], \quad (4)$$

где Δ определяет потерю энергии: $\Delta = E_0 - E$, величина $\xi(\theta) = (2m/M)(1 - \cos\theta)$ называется кинематическим фактором [13], $\sigma^2 = \sigma_{\text{exp}}^2 + \sigma_T^2$, где $\sigma_T = \sqrt{2E_0RT \frac{m}{M}}$, σ_{exp} — уширение, определяемое немонотонностью зондирующего пучка и аппаратной функцией энергоанализатора.

Первое слагаемое формулы (3) имеет вид:

$$T_{\text{in}}(r, \Delta) = g(\Delta) e^{-r/l_{\text{in}}},$$

оно описывает электроны, которые, пройдя в мишени путь s , избежали попадания в неупругий канал рассеяния. Из формул (2) и (3) следует вид функции описывающей пик упругорассеянных электронов:

$$R, T_{\text{ERE}}(x, \Delta, \Omega_0, \Omega) = g(\Delta) \int_0^{\infty} dr R, T(x, r, \Omega_0, \Omega) e^{-r/l_{\text{in}}}. \quad (5)$$

Наиболее сложным элементом задачи аналитического описания пика упругорассеянных электронов является отыскание функций $R, T(x, s, \Omega_0, \Omega)$ — распределений отраженных и прошедших сквозь мишень электронов по длинам пробега в мишени. Последовательное аналитическое определение функций $R, T(x, s, \Omega_0, \Omega)$ следует строить на основе решения граничной задачи для уравнения переноса.

Если говорить о прототипе данной методики — обратном резерфордовском рассеянии (RBS), то следует отметить, что успех RBS-методики состоит в простоте „прочтения“ спектра (на основе представления спектра с помощью модели одного отклонения) с целью определения послыонного и компонентного состава мишени. Поэтому задача нахождения простых, но адекватных методик описания процесса упругого отражения является чрезвычайно своевременной. Главной особенностью электронного рассеяния является сильная вытянутость упругого сечения рассеяния. Именно это обстоятельство позволило создать малоугловое приближение в теории переноса быстрых заряженных частиц. Ярким примером успешного применения малоуглового приближения является RBS-методика.

В работах [12,14–16] доказано, что сильная вытянутость сечения упругого рассеяния позволяет обосновать ряд упрощающих предположений, дающих возможность найти аналитические решения для функций $R, T(x, s, \Omega_0, \Omega)$, описывающих многократное рассеяние атомных частиц в твердом теле.

В настоящей работе для расчета функции распределения по длинам пробега электронов в твердом теле будет использоваться решение граничной задачи для уравнения переноса, полученное на основе принципов инвариантности [17,18]. Для нахождения аналитических решений будет использоваться малоугловое приближение [14].

Полученные решения будут использованы для описания спектров электронов, как рассеянных на углеводородных пленках, так и отраженных от полубесконечных углеводородных мишеней, с целью точной количественной интерпретации экспериментальных данных, представленных в работах [2–4,7,8]. Будут приведены энергетические спектры электронов, рассеянных на углеводородных пленках, содержащих изотопы водорода: дейтерий и тритий.

Расчет функций пропускания и отражения электронов плоскопараллельными слоями в малоугловом приближении

Решение граничной задачи для уравнения переноса методами инвариантного погружения [17,18] приводит нас к уравнениям для функций пропускания [19] $T(x, p, \mu_0, \varphi_0, \mu, \varphi)$ и отражения $R(x, p, \mu_0, \varphi_0, \mu, \varphi)$:

$$\begin{aligned} & \frac{[\sigma_{el} + W(p)]}{\mu_0} T(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) + \frac{\partial T(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0)}{n \partial x} \\ &= \exp \left[-\frac{x n (\sigma_{el} + W(p))}{\mu} \right] \omega_{el}(\mu, \varphi, -\mu_0, \varphi_0) \\ &+ \int_0^{2\pi} \int_0^1 \omega_{el}(-\mu, \varphi, -\mu', \varphi') T(x, p, \mu', \varphi', \mu_0, \varphi_0) \frac{d\mu'}{\mu'} d\varphi' \\ &+ \exp \left[-\frac{x n (\sigma_{el} + W(p))}{\mu} \right] \int_0^{2\pi} \int_0^1 R(x, p, \mu', \varphi', -\mu_0, \varphi_0) \\ &\times \omega_{el}(\mu, \varphi, \mu', \varphi') \frac{d\mu'}{\mu'} d\varphi' + \int_0^{2\pi} \int_0^1 R(x, p, \mu'', \varphi'', \mu_0, \varphi_0) \\ &\times \omega_{el}(\mu', \varphi', -\mu'', \varphi'') T(x, p, \mu, \varphi, \mu', \varphi') \frac{d\mu'}{\mu'} d\varphi' \frac{d\mu''}{\mu''} d\varphi'' \end{aligned} \quad (6)$$

и

$$\begin{aligned} & [W_{in}(p) + \sigma_{el}] \left(\frac{1}{\mu} + \frac{1}{\mu_0} \right) R(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) \\ &+ \frac{\partial R(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0)}{n \partial x} = \omega_{el}(\mu, \varphi, -\mu_0, \varphi_0) \\ &+ \int_0^{2\pi} \int_0^1 \omega_{el}(\mu, \varphi, \mu', \varphi') R(x, p, \mu', \varphi', \mu_0, \varphi_0) \frac{d\mu'}{\mu'} d\varphi' \\ &+ \int_0^{2\pi} \int_0^1 R(x, p, \mu, \varphi, \mu', \varphi') \omega_{el}(-\mu', \varphi', -\mu_0, \varphi_0) \frac{d\mu'}{\mu'} d\varphi' \\ &+ \int_0^{2\pi} \int_0^1 R(x, p, \mu, \varphi, \mu', \varphi') \omega_{el}(-\mu', \varphi', \mu'', \varphi'') \\ &\times R(x, p, \mu'', \varphi'', \mu_0, \varphi_0) \frac{d\mu'}{\mu'} d\varphi' \frac{d\mu''}{\mu''} d\varphi''. \end{aligned} \quad (7)$$

Здесь p — лаплас-образ потери энергии Δ ,

$$W_{in}(p) = n \left[\sigma_{in} - \int_0^{\infty} \omega_{in}(E_0, \Delta) \exp(-p\Delta) d\Delta \right]$$

— введенная Ландау [11] функция.

Перейдем к новым переменным:

$$T = \mu \mu_0 t \quad \text{и} \quad R = \frac{\mu \mu_0}{\mu + \mu_0} r. \quad (8)$$

Можно разложить функции r, t, ω_{el} в ряд по полиномам Лежандра:

$$\begin{aligned} r(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) &= \sum_{l,m} r_{lm}(x, p) \frac{2l+1}{2} \\ &\times P_{lm}(\mu) P_{lm}(\mu_0) \cos(\varphi - \varphi_0), \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \omega_{el}(\mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) &= \sum_{l,m} \omega_{lm} \frac{2l+1}{2} \\ &\times P_{lm}(\mu) P_{lm}(\mu_0) \cos(\varphi - \varphi_0), \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} t(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) &= \sum_{l,m} t_{lm}(x, p) \frac{2l+1}{2} \\ &\times P_{lm}(\mu) P_{lm}(\mu_0) \cos(\varphi - \varphi_0). \end{aligned} \quad (11)$$

Если сделать замену $W(p) = p/n$, то переменную p можно рассматривать как лаплас-образ пробега электрона в мишени. Будем считать слой тонким, так что $x \approx (n\sigma_{el})^{-1}$, где величина $l_{in} = (n\sigma_{el})^{-1}$ имеет смысл среднего пробега между упругими соударениями. Тогда только в уравнениях (6) и (7), в нелинейных слагаемых, можно пренебречь отражениями от слоя: $R(x, p, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) \rightarrow 0$. Уравнения (6) и (7) в малоугловом приближении [16] преобразуются к виду:

$$\begin{aligned} & \mu_0(1 + pl_{el})t_{lm}(x, p) + \mu\mu_0 l_{el} \frac{\partial t_{lm}(x, p)}{\partial x} \\ &= \exp \left[-\frac{n(\sigma_{el} + p/n)x}{\mu} \right] I_{lm} + \mu_0 I_l t_{lm}(x, p), \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} & (1 + pl_{el})r_{lm}(x, p) + \frac{\mu\mu_0 l_{el}}{\mu + \mu_0} \frac{\partial}{\partial x} r_{lm}(x, p) \\ &= I_{lm} - 1 + I_{lm} r_{lm}(x, p) - \frac{I_l - 1}{4} r_{lm}^2(x, p). \end{aligned} \quad (13)$$

Здесь $I_{lm} = \omega_{lm}/\sigma_{el}$ — нормированные коэффициенты разложения сечения упругого рассеяния в ряд по полиномам Лежандра. Решая уравнения (6), (7) и делая обратное преобразование Лапласа $p \rightarrow r, u = r/l_{el}, c$ учетом (8)–(11) приходим к выражениям:

$$\begin{aligned} t_{lm}(x, u) &= \frac{I_{lm}}{l_{el}(\mu_0 - \mu)} e^{\left[\frac{\mu_0 l_{lm}}{(\mu_0 - \mu)} - 1 \right] u} e^{-\left| \frac{l_{lm}}{(\mu_0 - \mu)} \right| x} \\ &\times \left[\eta \left(u - \frac{x}{l_{el}\mu_0} \right) - \eta \left(u - \frac{x}{l_{el}\mu} \right) \right] \end{aligned} \quad (14)$$

и

$$r_{lm}(x, u) = \frac{\mu + \mu_0}{l_{el}\mu\mu_0} n(I_{lm} - 1) e^{-(I_{lm}-1)u} \eta \left(u - \frac{\mu - \mu_0}{l_{el}\mu\mu_0} x \right). \quad (15)$$

После подстановки решений (14), (15) в формулу (2) с учетом (3) получаем для функции пропускания:

$$T(x, \Delta, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) = \mu\mu_0 g_1(\Delta) \sum_{l,m} \frac{2l+1}{2} P_{lm}(\mu) \times P_{lm}(\mu_0) \cos(\varphi - \varphi_0) \frac{I_{1lm}}{[(\mu_0 - \mu)(1 + \frac{l_{el}}{l_{in}}) - \mu_0 I_{1lm}]} \times \left\{ e^{\frac{x}{l_{el}\mu_0} (1 + \frac{l_{el}}{l_{in}})} - e^{\frac{x}{l_{el}\mu} [1 + \frac{l_{el}}{l_{in}} - I_{1lm}]} \right\} + \sum_{k=1}^{\infty} I_k(\Delta) C_k^T(x, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) \quad (16)$$

и для функции отражения

$$R(x, \Delta, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) = \frac{\mu\mu_0}{\mu + \mu_0} g(\Delta) \sum_{l,m} \bar{P}_{lm}(\mu_0) \bar{P}_{lm}(\mu) \times \cos(\varphi - \varphi_0) \frac{\omega_{lm} - \sigma_{el}}{\sigma - \omega_{lm}} \left[1 - e^{-\frac{\mu+\mu_0}{\mu\mu_0} n(\sigma - \omega_{lm})x} \right] + \sum_{k=1}^{\infty} I_k(\Delta) C_k^R(x, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0), \quad (17)$$

где

$$C_k^T(x, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) = \mu\mu_0 \sum_{l,m} \frac{2l+1}{2} P_{lm}(\mu) P_{lm}(\mu_0) \times \cos(\varphi - \varphi_0) \int_0^{\infty} dr e^{-r/l_{in}} \frac{(r/l_{in})^k}{k!} t_{lm}(x, r) \quad (18)$$

и

$$C_k^R(x, \mu, \varphi, \mu_0, \varphi_0) = \frac{\mu\mu_0}{\mu + \mu_0} \sum_{l,m} \bar{P}_{lm}(\mu) \bar{P}_{lm}(\mu_0) \times \cos(\varphi - \varphi_0) \int_0^{\infty} dr e^{-r/l_{in}} \frac{(r/l_{in})^k}{k!} r_{lm}(x, r). \quad (19)$$

Поскольку геометрия экспериментов, которые будут интерпретироваться в настоящей работе, такова, что они обладают цилиндрической симметрией, функции $T(x, \mu, \Delta)$ и $R(x, \mu, \Delta)$ зависят только от косинуса угла рассеяния μ

$$T(x, \mu, \Delta) = \mu g(\Delta) \sum_{l,m} \frac{2l+1}{2} P_l(\mu) \frac{I_l}{[(1-\mu)(1 + \frac{l_{el}}{l_{in}}) - I_l]} \times \left\{ e^{\frac{x}{l_{el}} (1 + \frac{l_{el}}{l_{in}})} - e^{\frac{x}{l_{el}\mu} (1 + \frac{l_{el}}{l_{in}} - I_l)} \right\} + \sum_{k=1}^{\infty} I_k(\Delta) C_k^T(x, \mu), \quad (20)$$

$$R(x, \mu_0, \Delta) = \frac{\mu_0}{1 + \mu_0} g(\Delta) \sum_{lm} \frac{2l+1}{2} P_l(\mu_0) \frac{I_l - 1}{1 + \frac{l_{el}}{l_{in}} - I_l} \times \left[1 - e^{-\frac{1+\mu_0}{\mu_0} (1 + \frac{l_{el}}{l_{in}} - I_l) \frac{x}{l_{el}}} \right] + \sum_{k=1}^{\infty} I_k(\Delta) C_k^R(x, \mu). \quad (21)$$

Формула (21) представляет собой решение линеаризованного уравнения (13), в котором отброшено последнее, нелинейное слагаемое. Анализ решения нелинейного уравнения (13) содержится в работе [16].

Однородные многокомпонентные мишени

Обобщение уравнений (20) и (21) на случай многокомпонентных материалов не составит труда, поскольку движение электрона представляется как цепь независимых столкновений. В этом случае энергетический спектр электронов, „простреливших“ мишень, определится выражением

$$T_{CH_s}(x, \mu, \Delta) = \mu \sum_{l,m} \frac{2l+1}{2} P_l(\mu) \times \frac{I_{C1} g_C(\Delta) + \xi I_{H1} g_H(\Delta)}{\left[(1-\mu) \left(1 + \xi + \frac{l_{C1}}{l_{in}} \right) - (I_{C1} + \xi I_{H1}) \right]} \times \left\{ e^{\frac{x}{l_{C1}} (1 + \xi + \frac{l_{C1}}{l_{in}})} - e^{\frac{x}{l_{C1}\mu} \left[1 + \xi + \frac{l_{C1}}{l_{in} - (I_{C1} + \xi I_{H1})} \right]} \right\} + \sum_{k=1}^{\infty} I_k^{CH_s}(\Delta) C_k^T(x, \mu) = T_C(x, \mu) g_C(\Delta) + T_H(x, \mu) g_H(\Delta) + \sum_{k=1}^{\infty} I_k^{CH_s}(\Delta) C_k^T(x, \mu). \quad (22)$$

Формула (22) представлена для случая, когда электроны падают нормально к поверхности слоя и рассеяние происходит в двухкомпонентном материале, поскольку будет использована для описания экспериментальных данных по рассеянию электронов полиэтиленовой (CH_2) пленкой.

Энергетический спектр электронов, отраженных от плоского полубесконечного слоя двухкомпонентного полиэтилена (CH_2), определится формулой:

$$R_{CH_s}(x, \mu_0, \Delta) = \frac{\mu_0}{(1 + \mu_0) l_{C1}} \sum_{lm} \frac{2l+1}{2} P_l(\mu) \times \left\{ \frac{(I_{C1} - 1) g_C(\Delta) + \xi (I_{H1} - 1) g_H(\Delta)}{\left[\frac{1}{l_{in}} + \frac{1}{l_{C1}} [(1 - I_{C1}) + \xi (1 - I_{H1})] \right]} + \frac{g_C(\Delta) + \xi g_H(\Delta)}{\frac{1}{l_{in}} + \frac{1}{l_{C1}} (1 + \xi)} \right\} + \sum_{k=1}^{\infty} I_k^{CH_s}(\Delta) C_k^R(x, \mu) = R_C(x, \mu) g_C(\Delta) + R_H(x, \mu) g_H(\Delta) + \sum_{k=1}^{\infty} I_k^{CH_s}(\Delta) C_k^R(x, \mu). \quad (23)$$

Здесь $\xi = \frac{l_{C1}}{l_{H1}} s$, где s — стехиометрический коэффициент соединения CH_s .

В выражении (22) выполнена „привязка“ к экспериментам, где анализируются отраженные по нормали к мишени электроны: $\mu = -1$. Второе слагаемое в фигурных скобках (23), под знаком суммы, пропорционально $\delta(\mu - \mu_0)$ и не вносит вклада в отраженный поток, но исключает сингулярности, возникающие при больших значениях l , способствуя удобству численных расчетов.

Отметим еще раз, что формулы получены в малоугловом приближении, так что поворот траектории на большой угол происходит в одном „сильном“ столкновении, упругое многократное рассеяние лишь подправляет траектории так, чтобы вылетевший из слоя электрон попал в заданный интервал углов.

Результаты и их обсуждение

Используем формулы (22) и (23) для интерпретации результатов экспериментов, приведенных в работах [4] и [7]. На рис. 1 представлены зависимости интенсивностей упругого рассеяния электронов на ядрах углерода и протонах в полиэтиленовой пленке в зависимости от безразмерной толщины слоя $u = x/l_{C_{el}}$. Сечения упругого рассеяния, на основе которых вычислялись коэффициенты разложения в ряд по полиномам Лежандра I_{C1} и I_{H1} , средние пробеги между упругими столкновениями $l_{C_{el}}$ и $l_{H_{el}}$ определялись из данных [20], средняя длина пробега между неупругими столкновениями в полиэтилене l_{in} определялась на основе результатов работы [21]. Кривые имеют максимум, соответствующий толщине слоя равной примерно половине средней длины свободного пробега между упругими рассеяниями на углероде: $x \simeq l_{C_{el}}/2$.

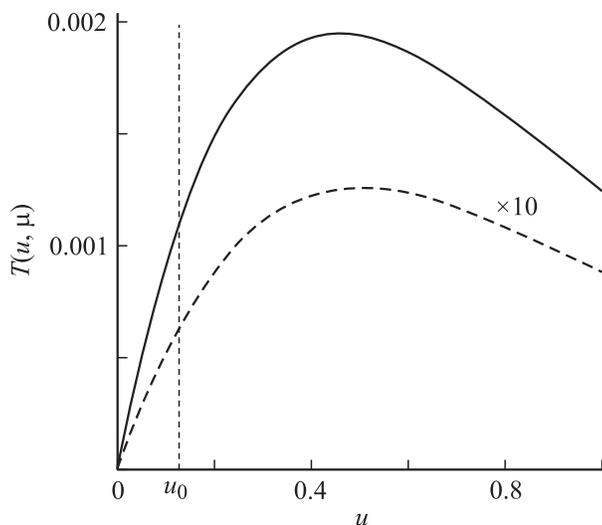


Рис. 1. Плотность потока электронов, упругорассеянных на угол 44.3° , при прохождении через пленку полиэтилена толщиной 10 нм. Начальная энергия $E_0 = 20$ keV. Верхняя кривая — рассеяние на углероде, нижняя (пунктир) — рассеяние на протонах. Расчет на основе (22).

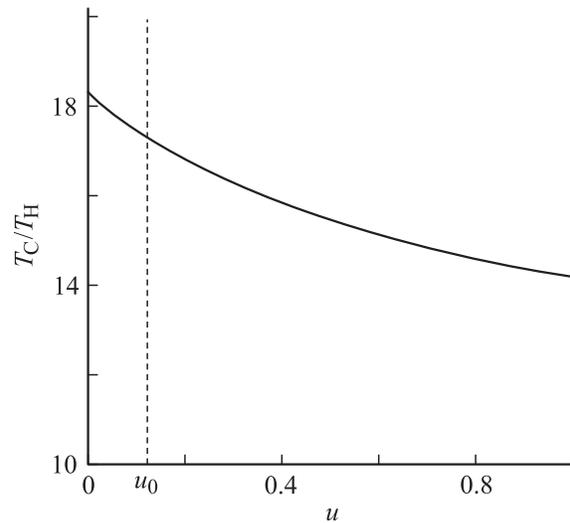


Рис. 2. Отношение плотности потока электронов, упругорассеянных на угол 44.3° на углероде, к плотности электронов, упругорассеянных на водороде при прохождении через пленку полиэтилена толщиной 10 нм. Расчет на основе (22).

Графики на рис. 1 представлены для энергии 20 keV, расчеты показывают, что вид кривых практически неизменен для энергетического интервала 15–30 keV. Вертикальный пунктир на рис. 1 и 2 показывает толщину мишени, используемую в эксперименте [4].

На рис. 2 дан график зависимости отношения интенсивностей упругого рассеяния на углероде и протонах для полиэтилена CH_2 . При толщине слоя, стремящейся к нулю, процессами многократного рассеяния можно пренебречь, и имеют место только процессы однократного упругого рассеяния. Отношение интенсивностей рассеяния при $x \rightarrow 0$ определяется отношением сечений упругого рассеяния: $T_C/T_H = \sigma_{C_{el}}/2\sigma_{H_{el}} \simeq Z_C^2/2Z_H^2 = 18$. С ростом толщины слоя за счет влияния многократных упругих рассеяний значение отношения T_C/T_H уменьшается. Однако экспериментальные данные [4] указывают, что отношение T_C/T_H превышает величину, соответствующую $x \rightarrow 0$. Это превышение, как и в работах [2–4], объясняется процессами радиационно-стимулированного „выбивания“ водорода из полиэтилена. Как следует из формулы (1), при электронной бомбардировке образца электронами с энергией 20 keV протонам передается энергия до 40 eV. Энергия $\varepsilon = 40$ eV значительно превышает величину пороговой энергии смещения водорода в полиэтилене, равную примерно 4 eV [23]. Подтверждением этому предположению является факт еще большего уменьшения значения коэффициента s при длительной экспозиции пленки электронным пучком [2–4]. Отметим, что в формулах (22) и (23) при вычислении плотности потоков, упругорассеянных на угол 44.3° , единственным неопределенным параметром является величина s , определяющая содержание водорода в углероде.

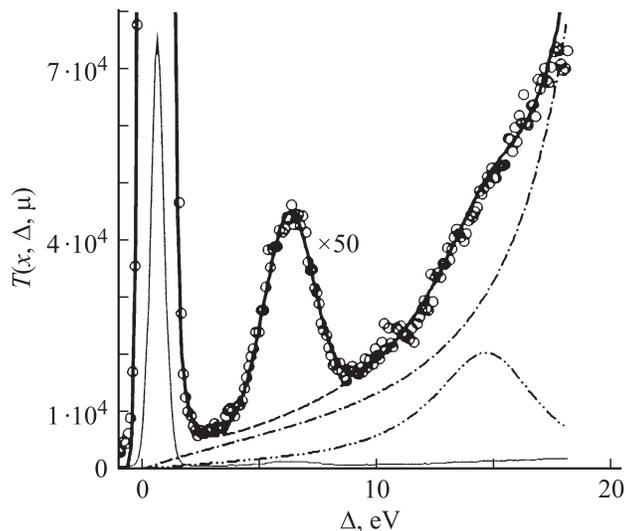


Рис. 3. Энергетический спектр электронов, упругорассеянных на угол 44.3° , при прохождении через пленку полиэтилена толщиной 10 nm. Начальная энергия $E_0 = 20$ keV. Расчет на основе (22) сплошная линия. Кружки — экспериментальные точки [4], штрихпунктир — вклад объемных плазмонов, пунктир с двумя точками — вклад поверхностных плазмонов.

На рис. 3 кружками представлены экспериментальные энергетические спектры электронов, упругорассеянных в полиэтиленовой пленке толщиной 10 nm [4], энергия зондирующего пучка $E_0 = 20$ keV — расчет выполнен на основе формулы (23). В функцию $I_1(\Delta) = \omega_{in}(\Delta)/\sigma_{in}$ были включены только потери на возбуждение плазменных колебаний

$$I_1(\Delta) = I_1^{P1}(\Delta) + I_1^{P2}(\Delta), \quad (24)$$

где

$$I_1^{Pk}(\varepsilon) = \frac{K_k}{(\varepsilon^2 - \varepsilon_{plk}^2)^2 + b_k^4},$$

$$K_k = \frac{\pi}{\sqrt{8(\varepsilon_{plk}^4 + b_k^4)(\sqrt{\varepsilon_{pl}^4 + b_k^4} - \varepsilon_{plk}^2)}}. \quad (25)$$

В расчетах было принято: $\varepsilon_{pl1} = 14.5$ eV, $\varepsilon_{pl2} = 22$ eV, $b_1 = 9$ eV, $b_2 = 10$ eV.

Учет потерь энергии на ионизацию K-оболочки углерода (с потенциалом ионизации 296 eV) неактуален, поскольку в [2–4,7,8] регистрировался очень узкий интервал потерь энергии: $0 \leq \Delta \leq 20$ eV.

На рис. 4 представлены рассчитанные на основе (22) спектры электронов, рассеянных на образцах: $\text{CH}_{1.4}$, $\text{CD}_{1.4}$, $\text{CT}_{1.4}$. Пики электронов, упругорассеянных на ядрах дейтерия и особенно трития, разрешены лучше, чем протонный пик, что объясняет формула (9). Для экспериментов по измерению пиков электронов, упругоотраженных от изотопов водорода [2–4,7], характерно, что $\sigma_{\text{exp}} \ll \sigma_T$, поэтому в (4) $\sigma \simeq \sigma_T$. Но доплеровское уширение обратно пропорционально корню из массы ядра $\sigma_T \sim 1/\sqrt{M}$, поэтому ширина пика электронов,

упругоотраженных от ядер дейтерия, в $\sqrt{2}$ раз, а в случае трития — в $\sqrt{3}$ уже пика электронов, упругоотраженных от протонов.

На рис. 5 представлены результаты, полученные в экспериментах на отражение [7], расчеты выполнены на основе формулы (23). При расчетах использованы те же параметры сечений плазменных возбуждений, что и при интерпретации экспериментальных данных работы [4].

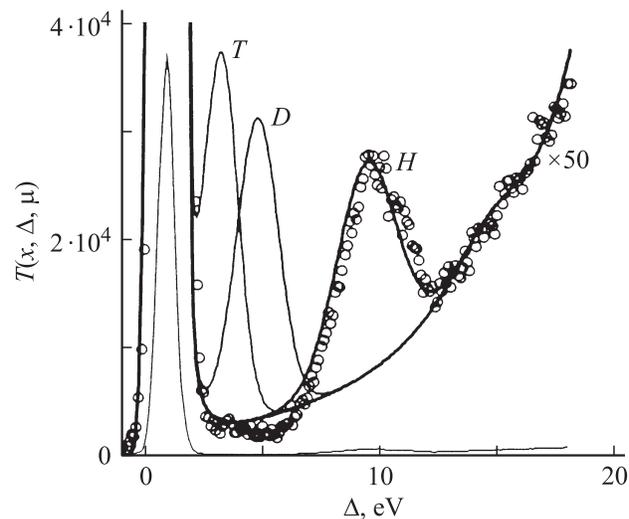


Рис. 4. Энергетические спектры электронов, упругорассеянных на угол 44.3° , при прохождении через пленки $\text{CH}_{1.4}$, $\text{CD}_{1.4}$, $\text{CT}_{1.4}$ толщиной 10 nm. Начальная энергия $E_0 = 30$ keV. Кружки — эксперимент [4], сплошные линии расчет (22). Спектры различаются только пиком упругорассеянных на изотопах водорода электронов.

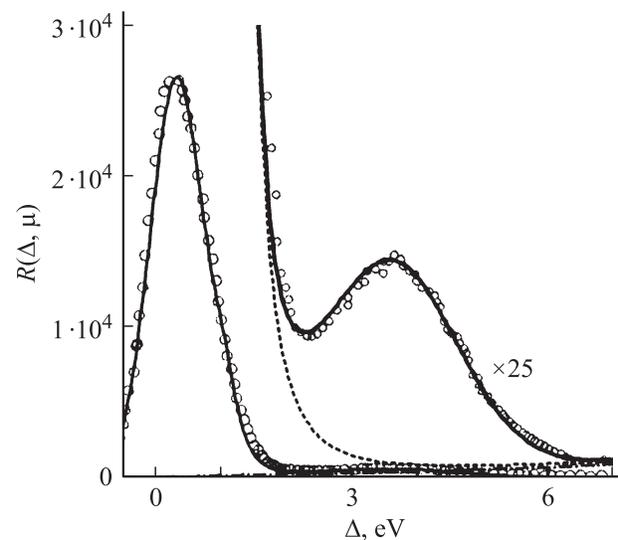


Рис. 5. Энергетический спектр электронов, упругоотраженных от полубесконечного полиэтиленового образца. Угол падения 50° к нормали, наблюдение по нормали к образцу. Сплошная линия расчет (22), кружки — эксперимент [7]. $E_0 = 2$ keV.

Отметим, что экспериментальные данные хорошо соответствуют простой оценочной формуле, полученной в работе [23]. Сечения упругого рассеяния и средняя длина свободного пробега между неупругими столкновениями определены в соответствии с работами [20] и [21].

Обработка данных, представленных на рис. 3 и 4, показывает, что интенсивность пика электронов, упругоотраженных от протонов в полиэтилене, где коэффициент $s \approx 1$, измерена с погрешностью 3%. Поэтому с уменьшением концентрации водорода в углероде будет расти и погрешность в определении величины s , минимальная концентрация водорода, которую можно зафиксировать указанным методом, составит $s \approx 0.1$. Оценка случайной погрешности в определении коэффициента s для экспериментов, выполненных в работах [7,8], приводит нас к подобному результату.

Полученные в работе результаты указывают, что чувствительность данного метода определения изотопного состава водорода в конструкционных материалах можно значительно повысить за счет выбора геометрии эксперимента:

1. Увеличение толщины пленки до значений $l_{\text{Cел}}/2$, соответствующих максимуму на кривой рис. 1, приведет к двукратному увеличению интенсивности рассеяния на водорододе.

2. Двукратное уменьшение угла рассеяния приведет к увеличению интенсивности пика рассеяния на водорододе примерно в двадцать раз!

Имеется целый ряд возможностей оптимизации и экспериментов на отражение, обсуждение этого вопроса, однако, выходит за рамки нашей статьи.

Заключение

Большое значение имеет вопрос о возможности измерения послыонного профиля изотопов водорода в мишени. Для экспериментов на прострел в тонком слое [2–4] такой возможности не существует, измеряется среднее по толщине мишени значение коэффициента s . В экспериментах на отражение, выполненных при различных энергиях зондирующего пучка, имеется возможность определения послыонного профиля. Эта возможность следует из формулы (5). Регистрируемый пик упругоотраженных электронов сформирован частицами, прошедшими в мишени путь $r \approx l_{\text{ин}}$. Например, при увеличении энергии зондирующего пучка от 100 до 10 000 eV значение $l_{\text{ин}}$ возрастает от 0.8 до 21 nm [19].

Определив коэффициенты s при различных энергиях зондирующего пучка, измерим величину средней концентрации изотопов водорода \bar{s} в слоях толщиной $d \approx l_{\text{ин}}$ и восстановим по этим данным послыонный профиль в приповерхностном слое неразрушающим образом. Послыонный анализ изотопного состава водорода на значения глубины, превышающие величину неупругого пробега электрона в мишени, можно выполнить на оже-спектрометрах с послыонным распылением.

Для неразрушающего определения послыонного профиля водорода безотносительно к его изотопному составу следует использовать методику, которая основана на измерении эффективного атомного номера $Z_{\text{эф}}$ в различных слоях мишени. Экспериментальная возможность реализации указанной методики представлена в работе [24], где исследовались образцы Nb, имплантированные азотом N. Глубина зондирования мишени в электронной спектроскопии для послыонного анализа ограничена сверху величиной длины транспортного пробега. Так, например, при энергии зондирующего пучка $E_0 = 10 \text{ keV}$ глубина зондирования азота в ниобии оказалась порядка 1000 Å, по аналогии глубина зондирования суммарного содержания водорода в углероде при этой же энергии зондирующего пучка составит 20 000 Å.

Список литературы

- [1] Boersch H., Wolter R., Schoenebeck H. // *Z. Phys.* 1967. Vol. 199. P. 124.
- [2] Vos M. // *Phys. Rev. A.* 2002. Vol. 65. P. 12 703.
- [3] Vos M. // *Ultramicroscopy.* (2002) Vol. 92. P. 143.
- [4] Vos M. et al. // *NIM in Phys. Res. B.* 2005. Vol. 227. P. 233.
- [5] Sulyok A. et al. // *Vacuum.* 2001. Vol. 63. P. 371.
- [6] Gergerly G. // *Proc. Surf. Sci.* 2002. Vol. 71. P. 31.
- [7] Orosz G.T., Gergerly G. et al. // *Surf. Sci.* 2004. Vol. 566–568. P. 544.
- [8] Varga D. et al. // *Surf. Interface Anal.* 2006. Vol. 38. P. 544.
- [9] Макаров В.В. и др. // Проблемы физической электроники. Л.: Изд-во ФТИ, 1986. С. 74–94.
- [10] Tougaard S., Sigmund P. // *Phys. Rev. B.* 1982. Vol. 25. P. 4452.
- [11] Ландау Л.Д. Собрание трудов. М.: Наука, 1969. Т. 1. С. 482–490.
- [12] Afanas'ev V.P., Lubenchenko A., Gubkin M. // *Eur. Phys. J. B.* 2004. Vol. 37. P. 117.
- [13] Chi W.K., Mayer J.M., Nicolet M.A. Backscattering spectroscopy. N.Y.: Academic Press, 1978. 384 p.
- [14] Afanas'ev V.P., Naujoks D. // *Z. Phys. B.* 1991. Bd. 84. S. 397.
- [15] Afanas'ev V.P., Fedorovich S.D., Lubenchenko A.V. et al. // *Z. Phys. B.* 1994. Bd. 96. S. 253.
- [16] Afanas'ev V.P., Lubenchenko A.V. // *Surface Investigation.* 1998. Vol. 13. P. 1087.
- [17] Dashen R.F. // *Phys. Rev.* 1964. Vol. 134. P. 1025.
- [18] Чандрасекар С. Перенос лучистой энергии. М.: ИЛ, 1953. 462 с.
- [19] Афанасьев В.П. // *Изв. РАН. сер. физ.* 2006. Т. 70. № 6. С. 842.
- [20] Salvat F., Mayol R. // *Comput. Phys. Commun.* 1993. Vol. 74. P. 358.
- [21] Tan Z. et al. // *NIM in Phys Res. B.* 2004. Vol. 222. P. 27.
- [22] Egerton R. // *Phys. Stat. Solid. A.* 1976. Vol. 37. P. 663.
- [23] Афанасьев В.П. // *Поверхность.* 2005. № 3. С. 19.
- [24] Афанасьев В.П., Федорович С.Д., Лубенченко А.В. // *Письма ЖТФ* 1995. Т. 21. Вып. 10. С. 85.