

ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ЖЕЛЕЗНОДОРОЖНОГО
ТРАНСПОРТА
ИРКУТСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ПУТЕЙ
СООБЩЕНИЯ

На правах рукописи

Портной Александр Юрьевич

**Физические процессы формирования сигнала и фона при
использовании энергодисперсионных детекторов
рентгеновского и гамма излучения**

Специальность 01.04.01 –
"Приборы и методы экспериментальной физики"

Диссертация на соискание ученой степени доктора
физико-математических наук

Научный консультант -
доктор физико-математических наук
Павлинский Гелий Вениаминович

Иркутск – 2018

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	5	
ГЛАВА 1. Современное состояние и основные проблемы		
рентгенофлуоресцентного анализа	16	
1.1. Структурные схемы рентгенофлуоресцентных спектрометров.....	16	
1.2. Источники рентгеновского излучения.....	19	
1.3. Сечения процессов взаимодействия излучения с веществом	29	
1.4. Математические методы изучения переноса излучения.....	40	
1.5. Описание процессов взаимодействия излучения с веществом для спектрометра с традиционной геометрией	44	
1.6. Параметры кристалл-анализаторов (монохроматоров) рентгенофлуоресцентных спектрометров	54	
1.7. Процессы в детекторе.....	61	
1.8. Способы обработки спектров и рентгенофлуоресцентного анализа.....	98	
1.9. Цели и задачи работы.....	103	
ГЛАВА 2. Изучение процессов переноса энергии в детекторах.....		105
2.1. Модель взаимодействия излучения с веществом детектора.....	105	
2.2. Расчет параметров функции отклика детекторов.....	112	
2.3. Экспериментальная проверка результатов расчета функции отклика детектора в области энергий до 10 кэВ.....	136	
2.4. Сопоставление результатов расчета функции отклика детектора с экспериментальными данными для энергий излучения более 10 кэВ	140	

2.5. Пространственное разрешение координатно – чувствительных детекторов.....	149
2.6. Выводы.....	153
ГЛАВА 3. Совершенствование моделей формирования измеряемого сигнала и фона.....	
3.1. Последовательная модель описания сигнала и фона.....	155
3.2. Уточнение геометрической модели источник – образец – детектор..	159
3.3. Влияние геометрического фактора на регистрируемые интенсивности процессов	162
3.4. Спектр, возникающей в образце при моноэнергетическом первичном излучении.....	169
3.5. Расчет и сравнение с экспериментальными данными измеряемого спектра при использовании источников рентгеновского излучения ^{109}Cd и ^{241}Am	171
3.6. Модель рентгеновской трубки с заземленным катодом.....	174
3.7. Расчет сигнала и фона при возбуждении флуоресценции излучением рентгеновских трубок и использовании Si(Li) детектора.....	178
3.8. Оценка контрастности при изменениях параметров регистрации для энергодисперсионного спектрометра с полупроводниковым детектором.	185
3.9. Выводы.....	200
ГЛАВА 4. Математическая модель двухслойных комбинированных детекторов и спектрометров на их основе.....	
4.1. Исследование параметров двухслойных детекторов.....	202
4.2. Оценка свойств энергодисперсионного спектрометра с двухслойным детектором.....	212
4.3. Выводы.....	215

ГЛАВА 5. Использование цифровой фильтрации амплитудных спектров при наличии априорной информации о функции отклика детектора	216
5.1. Особенности прохождения сигнала в рентгенооптических схемах по Соллеру и Иоганссону.....	216
5.2. Коррекция влияния наложения амплитудных спектров методами цифровой фильтрации.....	221
5.3. Применение фильтрации амплитудного спектра в экспериментах по подтверждению возбуждения флуоресценции углерода фото и Оже- электронами.....	229
5.4. Способ измерения интенсивности линии гамма излучения.....	233
5.5. Выводы	235
ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	237
Список публикаций по теме диссертации.....	240
Список литературы.....	246

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность проблемы и состояние вопроса

Идеал энергодисперсионного детектора излучения – некоторое «черное тело», в котором в точке регистрации фотона отсутствуют потери энергии. С точки зрения взаимодействия излучения с веществом, естественно, это не так, что является одной из причин наличия фона в регистрируемом сигнале.

Рентгенофлуоресцентная аппаратура и метод рентгенофлуоресцентного анализа (РФА) позволяют быстро и с высокой точностью определять состав веществ и материалов. Поэтому он широко используется в исследовательских организациях, а также промышленности для экспрессного контроля технологических процессов. Недостатком метода является недостаточное соотношение сигнал/фон и соответствующий предел обнаружения, которые существенно уступают другим методам анализа вещества (индукционно связанная плазма, атомная эмиссия и абсорбция, активационный анализ и др.).

Для улучшения соотношения сигнал/фон необходимы адекватные модели физических процессов, приводящих к формированию как сигнала, так и фона. Изменение режимов аппаратуры не всегда улучшает контрастность сигнала, так как с увеличением интенсивности рентгеновской флуоресценции одновременно растет интенсивность фона, основная часть которого, как в явном или не явном виде считается, обусловлена рассеянным тормозным рентгеновским излучением. Высокая интенсивность и неконтролируемые изменения интенсивности фонового сигнала являются главным препятствием в снижении предела обнаружения. Измерение интенсивности фона с длинноволновой и коротковолновой стороны от аналитической линии далеко не всегда возможно.

Учету же фона на сегодняшний день мешают следующий набор причин. Процесс возникновения фонового сигнала является, по крайней мере, двухступенчатым. Первая ступень – фоновое излучение, связанное с рассеянием первичного излучения самим образцом, которая достаточно хорошо изучена. В этой области также следует обратить внимание на не полную информацию о тормозном излучении фото, Оже и Комптоновских электронов, возникающих в облучаемом материале.

Кроме того, возникновение фонового излучения обычно рассматривается изолированно от формирования рентгеновской флуоресценции, что затрудняет сопоставление процессов, определяющих контрастность полезного сигнала. Вторая ступень – искажение детектором и системой регистрации аппаратуры спектрального состава попавшего в него излучения. На этой ступени следует учитывать по отдельности особенности энергодисперсионной и кристалл- дифракционной аппаратуры.

Энергодисперсионные рентгенофлуоресцентные спектрометры имеют компактную геометрию системы источника излучения, образца и детектора с сильно расходящимися пучками первичного и вторичного излучения образца, что затрудняет расчет спектра излучения, когерентно и некогерентно рассеянного образцом. Ограниченный размер полупроводникового детектора (ППД) обуславливает возможность выхода фотона из детектора как после взаимодействия его с веществом, так и при отсутствии такового. Также необходимо рассматривать возможность выхода электронов высоких энергий из детектора (под «высокой» энергией электронов будем понимать энергию больше 200 эВ). Если процесс выхода электронов высоких энергий изучен достаточно полно, то о дополнительном фоне, возникающем в результате комптоновского рассеяния фотона в детекторе, обычно лишь упоминается.

Для выбора материала и геометрических размеров рентгеновского или гамма детектора, используемого в конкретной ситуации, на стадии проектирования аппаратуры всегда важна априорная информация о качественном и количественном составе фона, поскольку зачастую, изменяя данные параметры, в ряде случаев можно изменить и контрастность.

При количественном расчете параметров и формы функции отклика детектора становится ясно, что недостаточно описанными являются процессы неполного сбора заряда в детекторе внутри мертвого слоя, а также процесс регистрации излучения после Комптоновского рассеяния фотона в детекторе. Поскольку при регистрации фотона в области гамма излучения основным процессом, приводящим к регистрации фотона, является Комптоновское рассеяние, изменяющее дальнейшую

траекторию рассеянного фотона, то это влияет и на пространственное разрешение координатно-чувствительных детекторов.

При выполнении расчетов оказалось, что в некоторых случаях предельные уровни по отношению сигнал/фон в энергодисперсионном флуоресцентном анализе уже достигнуты, в некоторых случаях – возможны улучшения, связанные либо с применением детекторов из различных материалов, либо с изменением толщины Si¹ детектора. Также практически значимые расчеты удалось провести, предполагая, что детекторы можно выполнить двухслойными и контролируя двойные события, связанные с рассеянием и поглощением, с помощью схемы временных совпадений.

В кристалл – дифракционной аппаратуре используются кристалл-анализаторы для разложения в спектр излучения образца и для выделения регистрируемой линии (амплитудный дискриминатор). Эти элементы вносят свой вклад в искажение интенсивности регистрируемого сигнала. Ограниченные размеры пропорциональных детекторов, используемых в этой аппаратуре, вносят в спектр те же искажения, что и при использовании полупроводниковых детекторов в энергодисперсионной регистрации сигналов.

Таким образом, развитие представлений о физических процессах формирования регистрируемого сигнала и фона является важной научной проблемой и необходимо для дальнейшего совершенствования рентгенофлуоресцентной аппаратуры и метода анализа.

Качественный анализ отечественных и зарубежных работ, в том числе проведенных после исследований автора, показывает, что перспективным для решения совокупности задач по рассмотрению процессов формирования сигнала и фона, а также соответствующей теории, является применение методов комплексного моделирования процессов в сложных приборных системах, с учетом процессов в каждом элементе системы.

¹ Здесь и далее под Si детектором будут пониматься Si(Li), Si pin, Si SDD детекторы, в которых отсутствуют средства для различения события, которое привело к регистрации фотона как в результате полного поглощения, так и в результате частичного поглощения с потерей остальной энергии. То же самое касается и Ge детекторов.

Таким образом, целью работы является развитие теоретических основ РФА, позволяющих адекватно экспериментальным данным описывать сигнал и фон, прогнозировать предельно возможное отношение сигнал/фон, определяемое процессами радиационного и электронного переноса, в том числе разработка моделей, пригодных для описания формирования сигнала и фона в рентгенофлуоресцентном анализе на основе комплексного рассмотрения процессов взаимодействия излучения с веществом на всех стадиях преобразования излучения в сигнал, регистрируемый аппаратурой, а также разработка новых решений, позволяющих в конкретных условиях эксперимента улучшить это соотношение, подавляя фоновую составляющую регистрируемого сигнала.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

- определить причины формирования фонового сигнала при регистрации рентгеновского излучения;
- развить теорию РФА: теоретически и экспериментально исследовать эффекты, имеющие место в случаях потери энергии в процессе переноса и поглощения фотона веществом полупроводникового детектора, которые усложняют форму функции отклика;
- сопоставить расчетные и экспериментальные данные спектров для энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа с радиоизотопным возбуждением;
- определить роль геометрии спектрометра при количественном описании формы энергетического распределения пика комптоновского рассеяния;
- рассмотреть способы увеличения соотношения сигнал/фон в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе путем подбора оптимальных условий возбуждения и регистрации сигнала, таких как источник возбуждающего излучения, толщина и материал детектора;
- теоретически обосновать двухслойный детектор рентгеновского излучения с первым слоем из Si, вторым слоем – из Ge, AsGa либо CdTe, рассчитать оптимальные параметры кремниевого слоя такого детектора, изучить условия в энергодисперсионном спектрометре, при которых можно рассчитывать на повышение контрастности при измерениях;

- экспериментально рассмотреть вклады составляющих фона в каналах спектрометра по Соллеру и Иогансону при использовании газовых детекторов в пропорциональном режиме; предложить приемы, позволяющие уменьшить величину фона;

- предложить экспериментальные способы учета влияния фона, в большей части обусловленного вторыми порядками отражения на псевдокристаллах в случае возбуждения рентгеновской флуоресценции элементов с малыми атомными номерами и использовании пропорциональных газовых детекторов.

В такой совокупности перечисленные задачи ранее не ставились, поэтому не имели законченного решения.

Научная новизна работы

1. Предложена и обоснована комплексная математическая модель детектора, учитывающая процессы как переноса излучения (включая поглощение и рассеяние), так и электронов высоких энергий, а также сбора заряда электронов низких энергий. Подобная модель позволяет с помощью метода Монте-Карло рассчитывать параметры функции отклика детектора: вероятности регистрации в пике полного поглощения, в низкоэнергетических «хвостах потерь», связанных с выходом электронов высоких энергий из образца и неполным сбором заряда электронов и дырок внутри мертвого слоя, в «горбе потерь» (имеются также названия «Compton escape plateau», «антикомптоновский пик», «антикомптоновский континуум»), связанном с выходом комптоновски рассеянного фотона из детектора и «пике потерь», связанном с выходом из детектора флуоресцентного фотона. Адекватность расчетов подтверждена сопоставлением с имеющимися экспериментальными данными.

2. Предложенная модель детектора использована для расчетов вероятностей регистрации в различных частях функции отклика детектора для Si и Ge детекторов различной толщины чувствительного и мертвого слоя. Даже при полном сборе зарядов образовавшихся носителей (нулевой толщине мертвого слоя) с низкоэнергетической стороны регистрируемой линии интенсивность регистрации в «хвосте потерь» будет обусловлена выходом электронов высокой энергии из материала детектора, что будет определять предельную контрастность

регистрации линии подобным детектором. Процессы радиационного переноса и поглощения энергии фотона в детекторе могут существенно ограничивать пространственное разрешение координатно-чувствительных детекторов.

3. Созданы теоретические основы двухслойного комбинированного детектора, с первым достаточно тонким слоем Si и вторым слоем Ge, AsGa либо CdTe, а одновременные события, связанные с двухкратными событиями рассеяния и (или) поглощения в разных детекторах регистрируются схемой антисовпадений. Вероятности регистрации в пиках потерь второго детектора существенно уменьшаются по сравнению с пиком потерь одиночного аналогичного детектора второго слоя, а вероятность регистрации в «горбе потерь», связанном с комптоновским рассеянием излучения в детекторе существенно ниже, чем для одиночного толстого Si детектора. Оценена оптимальная толщина Si слоя такого детектора.

4. Созданы теоретические основы для расчетов измеряемого (аналитического) сигнала и фона в энергодисперсионной аппаратуре. Расчеты могут быть выполнены на основе модели, включающей взаимодействие излучения с веществом образца и последующего взаимодействия излучения с веществом детектора. Впервые показано, что при введении геометрического фактора спектрометра для учета углов рассеяния в энергодисперсионном спектрометре и использовании указанной модели переноса в детекторе возможен расчет контрастности для различных условий возбуждения и детектирования, а, следовательно, и выбор оптимальных условий возбуждения и детектирования.

5. Впервые показано, что при использовании в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе с радиоизотопным возбуждением комбинированного двухслойного детектора в некоторых случаях возможно улучшение соотношения сигнал/фон.

6. Установлено на базе экспериментальных данных существенное различие состава фонового излучения, попадающего в детектор в спектрометрических каналах по Соллеру и Иоганссону. Впервые предложен способ фильтрации амплитудного спектра импульсов детектора, позволяющий при использовании Na канала по Иоганссону примерно в три раза увеличить контрастность при сохранении уровня

сигнала. На основе данного способа предложен способ учета наложения линий при использовании псевдокристаллов для разложения излучения в спектр.

Защищаемые научные положения

1. Учет процесса выхода фотона из детектора после фотопоглощения с последующей флуоресценцией, а также комптоновского рассеяния в модели радиационного переноса в детекторе позволяет описать функцию его отклика, включая «горб потерь», возникающий в результате выхода комптоновски рассеянного фотона из детектора и регистрации аппаратурой электрона отдачи как фотона с соответствующей энергией и дополнительный «хвост» «горба потерь» в область высоких энергий, обусловленный выходом фотона из детектора после многократного комптоновского рассеяния.

2. Вклады процессов переноса возникающих электронов высоких энергий и процессов неполного сбора заряда при переносе электроно-дырочных пар вследствие большей концентрации центров рекомбинации вблизи поверхности становятся соизмеримыми при толщине возникающего «мертвого слоя» порядка 0,1-0,2 мкм, что соответствует современным высококачественным полупроводниковым детекторам.

3. Учет процесса регистрации фотона в «горбе потерь» детектора в модели переноса энергии рентгеновским излучением и возникающими электронами в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном спектрометре с Si(Li) детектором, учитывающая процессы в образце и детекторе, показал, что фон в области энергий 1 – 12 кэВ при радиоактивном источнике ^{241}Am с имеющейся линией 59.5 кэВ, и в области энергий 1-20 кэВ при радиоактивном источнике ^{109}Cd с имеющейся линией 88 кэВ в основном (до 90%) обусловлен рассеянием высокоэнергетического первичного излучения веществом образца и

последующим его комптоновским рассеянием в детекторе с регистрацией в «горбе потерь».

4. Учет процессов переноса энергии в детекторе в математической модели спектрометра, включающей модели переноса излучения в образце и излучения и электронов в детекторе создал возможность подбора оптимального источника излучения и материала и толщины детектора, обеспечивающих максимальную контрастность. Уменьшение толщины Si(Li)детектора с 5 мм до 0.5 мм и использовании радиоактивного источника ^{241}Am приводит к уменьшению фоновой составляющей, обусловленной «горбом потерь» в диапазоне энергий 1-12 кэВ примерно в 8 раз².

5. Учет процессов переноса энергии в детекторе создал возможность разработать теоретические основы двухслойного комбинированного полупроводникового детектора, состоящего из ближнего к источнику излучения Si детектора и дальнего Ge, AsGa или CdTe детектора, подключенных к схеме антисовпадений. Подобные детекторы должны обладать лучшими свойствами – меньшей вероятностью регистрации высокоэнергетического излучения в «горбе потерь», обусловленном комптоновским рассеянием излучения в детекторе с последующим выходом рассеянного фотона из детектора, по сравнению с толстым кремниевым детектором, меньшей вероятностью регистрации в пиках фотопотерь по сравнению с детектором второго слоя, и эффективностью регистрации в области высоких энергий, аналогичной эффективности регистрации в детекторе второго слоя.

6. При применении двухслойного комбинированного детектора в спектрометре при использовании радиоизотопных источников ^{241}Am и

² Тем не менее, простое уменьшение толщины кремниевого детектора приводит к падению его эффективности уже при энергии излучения 20 кэВ для толщины детектора 0,5 мм.

^{109}Cd будет наблюдаться снижение фона, обусловленного процессами переноса излучения в детекторе.

7. Учет процессов радиационного переноса в газовом пропорциональном детекторе позволил реализовать способ фильтрации амплитудного спектра импульсов, использующий априорную информацию о сложной форме функции отклика детектора, возникающей вследствие процессов радиационного переноса, основанный на анализе формы снимаемого спектра, что позволяет уменьшить влияние наложений пика потерь от высоких порядков отражения на основной пик исследуемой линии в ряде практически важных случаев в спектрометрах с волновой дисперсией. Применение способа на Na канале аппарата СРМ-25 позволяет примерно в три раза снизить уровень фона по сравнению со стандартным методом «амплитудного дискриминатора» при сохранении уровня сигнала. Также примерно в три раза уменьшается неопределенность фона, обусловленная изменением химического состава образца.

Практическая значимость

Результаты работы являются основой для совершенствования рентгенофлуоресцентной аппаратуры и улучшения ее метрологических параметров. Знание процессов формирования фона в энергодисперсионном флуоресцентном анализе создает условия для эффективного учета и подавления фоновой составляющей.

Представленная в работе модель процессов в энергодисперсионном спектрометре является основой для расчета контрастности, позволяет описать форму функции отклика детектора и рассчитывать фон, обусловленный особенностями функции отклика детектора, а также выбирать оптимальные условия для возбуждения флуоресценции и детектирования излучения в конкретной ситуации.

Предложенный двухслойный комбинированный Si-Ge или Si-AsGa детектор в силу своих лучших характеристик может быть применен при прецизионных радиационных измерениях в широком диапазоне энергий.

Предложенный способ фильтрации амплитудного спектра является основой для улучшения соотношения сигнал/фон при использовании в квантометрах со спектрометрическими каналами по Иоганссону и Соллеру.

Апробация работы

Результаты работы докладывались и обсуждались на конференции «Неразрушающий контроль в науке и индустрии – 94», Москва, 1994; «Национальной конференции по применению рентгеновского, синхротронного излучений, нейтронов и электронов для исследования материалов», Дубна, 1997; Международном симпозиуме по радиационной физике, Прага, 2000; V, VII конференциях «Аналитика Сибири и Дальнего Востока», г. Новосибирск, 1996, 2004; XV Уральской конференции по спектроскопии, г. Заречный, 2001; IV-VII Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу, г. Иркутск, 2002, 2006, Краснодар, 2008, Новосибирск, 2011; 9 международной школе – семинаре по люминесценции и лазерной физике, г. Иркутск, 2004.

Публикации

Материалы по теме диссертации опубликованы в 40 работах, в т.ч. статей в журналах, рекомендуемых ВАК – 20, 2 патента. Список публикаций приведен в конце диссертации.

Обозначения, принятые в диссертации

E - энергия, единица измерения - кэВ (если не указано иное).

$\lambda=12.345/E$ - длина волны, Å (если не указано иное)

Z -атомный номер;

A - атомный вес;

N_A – число Авогадро

e - заряд электрона;

m_e - масса покоя электрона

\hbar - постоянная Планка;

Γ - ширина энергетического уровня,

$r_0=e^2/m_e c^2$ - классический радиус электрона

$r_0^2 =7.92*10^{-26}$ – квадрат классического радиуса электрона, [см²];

$a = \hbar^2/m_e^2$ - Боровский радиус электрона

ω_q –выход флуоресценции q серии

P_{lq} – относительная доля l линии в q серии

$\mu = \tau + \sigma_{\mu_coh} + \sigma_{\mu_comp}$ - массовый коэффициент ослабления [см²/г]

рентгеновского излучения;

τ - массовый коэффициент фотопоглощения рентгеновского излучения [см²/г];

τ_i – массовый коэффициент фотопоглощения i оболочкой.

σ_{coh} - сечение когерентного (Томсоновского) рассеяния [см²/г];

σ_{μ_coh} - массовый коэффициент когерентного (Томсоновского) рассеяния [см²/г];

σ_{comp} - сечение некогерентного (Комптоновского) рассеяния [см²/г];

σ_{μ_comp} - массовый коэффициент некогерентного (Комптоновского) рассеяния [см²/г];

N_A – число Авогадро;

N – интенсивность рентгеновского излучения, выраженная числом фотонов

C_i – концентрация i элемента в образце.

ГЛАВА 1

Современное состояние и основные проблемы рентгенофлуоресцентного анализа

Поскольку формирование сигнала и фона в рентгеновских флуоресцентных спектрометрах существенно зависит практически от всех элементов спектрометрического тракта, необходимо рассматривать все стадии преобразования излучения в электрический сигнал и его последующую регистрацию в виде спектра либо интенсивности отдельной линии.

1.1. Структурные схемы рентгенофлуоресцентных спектрометров.

Структурные схемы кристалл-дифракционных и энергодисперсионных спектрометров рассмотрены, например, в работе [1]. Схемы формирования сигнала в подобных спектрометрах показаны на рис. 1.1 и 1.2 соответственно.

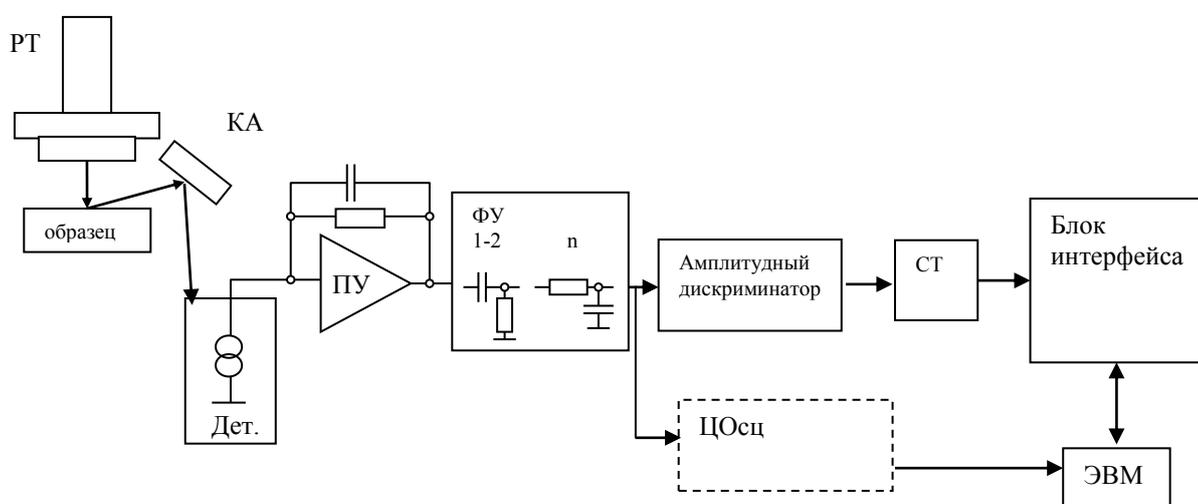


Рис. 1.1. Упрощенная схема измерительного тракта спектрометра с волновой дисперсией и амплитудным дискриминатором. РТ – рентгеновская трубка, КА – кристалл-анализатор, Дет. – детектор, ПУ – предварительный усилитель, ФУ – формирующий усилитель, СТ – счетчик. ЦОсц – цифровой осциллограф или амплитудный анализатор.

Спектрометр с волновой дисперсией (рис. 1.1) включает в себя рентгеновскую трубку, кристалл-анализатор с гониометрическим устройством, детектор, спектрометрический усилитель, амплитудный

дискриминатор и счетчик импульсов (событий). В рентгенофлуоресцентных многоканальных спектрометрах (квантометрах) используются упрощенные каналы, настроенные на конкретную длину волны линии регистрируемого элемента. В некоторых случаях (например, ARL-9800, СРМ-25М) кроме набора кристалл-анализаторов, настроенных на конкретную линию элемента, может устанавливаться гониометр, выполненный, как правило, по рентгенооптической схеме Соллера, реже - по схемам Иоганссона и Иоганна.

При регистрации фотона он поглощается веществом детектора, импульс тока с детектора поступает на вход интегрирующего предусилителя (ПУ). Время интегрирования выбирается достаточным для обеспечения полного сбора заряда в детекторе. Формирующий усилитель (ФУ) необходим для придания импульсу формы, оптимальной для дискриминации. Амплитудный дискриминатор пропускает только импульсы, амплитуда которых лежит в установленных пределах и при импульсе с допустимым значением амплитуды вырабатывает логический импульс, поступающий на счетчик (СТ). Блок интерфейса служит для считывания состояния счетчиков в ЭВМ, задания времени счета при управлении спектрометром от ЭВМ и т.п.

В качестве источников излучения в кристалл-дифракционных спектрометрах применяются рентгеновские трубки водяного охлаждения мощностью до 5 кВт. В энергодисперсионных спектрометрах используются рентгеновские трубки с прострельным анодом, острофокусные рентгеновские трубки, имеющие мощность 1-50 Вт, либо радиоизотопные источники.

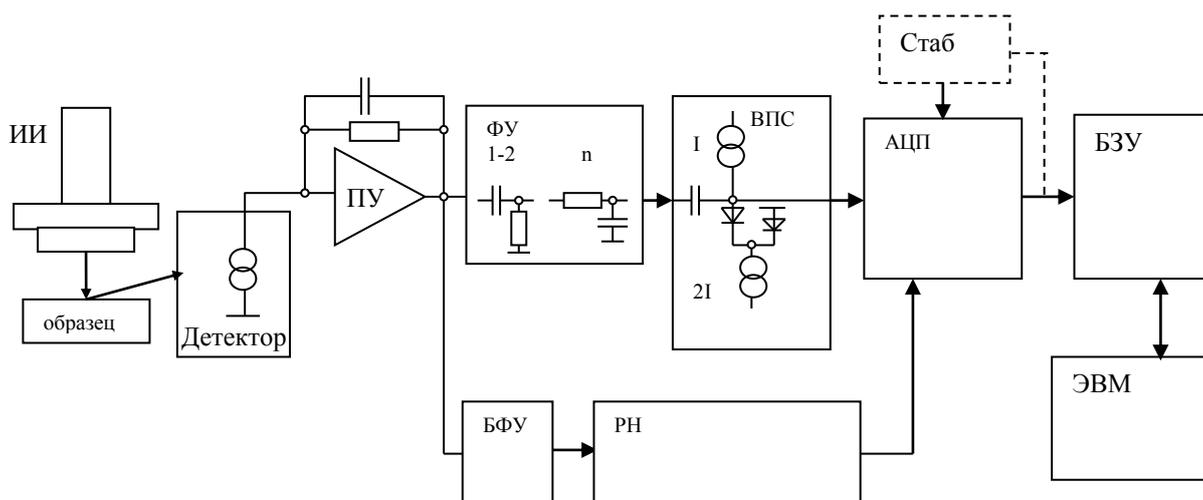


Рис. 1.2. Упрощенная структура спектрометрического тракта энергодисперсионного спектрометра [1] с амплитудным анализатором [2]. ИИ – источник излучения, ПУ - предусилитель, ФУ - формирующий усилитель, БФУ – быстрый усилитель, РН – режектор наложений, ВПС – восстановитель постоянной составляющей, Стаб – стабилизатор спектрометрического тракта, БЗУ – запоминающее устройство спектра.

На рис. 1.2 представлена структура измерительного тракта энергодисперсионного спектрометра [1] с амплитудным анализатором [2].

Короткий импульс тока с детектора при попадании в него фотона [2] поступает на вход интегрирующего предусилителя (ПУ), обеспечивающего полный сбор заряда детектора. Формирующий (спектрометрический) усилитель обрабатывает этот сигнал при помощи интегрирующих и дифференцирующих цепей и формирует его таким образом, чтобы получить хорошее разрешение при минимальной длительности импульса. Восстановитель постоянной составляющей (ВПС) поддерживает нулевой уровень (между входными импульсными сигналами) на входе АЦП. АЦП преобразует максимальную амплитуду сигнала в цифровой код, поступающий в буферное запоминающее устройство (БЗУ) и на стабилизатор спектрометрического тракта Стаб. БЗУ накапливает спектр амплитуд сигналов детектора. Также в нем находятся устройства для задания времени регистрации спектра. После окончания набора спектра последний передается в ЭВМ для обработки.

определяются положения и площади фотопиков и идентифицируются регистрируемые события по заданной программе. С выхода ПУ также снимаются сигналы для быстрого тракта: быстрый формирующий усилитель (БФУ) – режектор наложений (РН), который определяет случаи, когда детектор регистрирует сигналы, сдвинутые во времени на величину меньшую, чем длительность импульса на выходе ФУ. В этом случае формируется сигнал запрета работы АЦП, т.к. максимальная амплитуда импульса искажается. В некоторых случаях быстрый тракт используется для коррекции интенсивности спектра, снятого основным спектрометрическим трактом.

1.2. Источники рентгеновского излучения.

В рентгенофлуоресцентном анализе в качестве источников фотонов используются радиоизотопные источники и рентгеновские трубки.

Иногда в специальных целях в качестве источника излучения используется синхротрон. Синхротронное излучение – это магнитотормозное излучение, испускаемое заряженными релятивистскими частицами, когда магнитное поле заставляет их двигаться по круговым орбитам. Подробнее синхротронное излучение описано, например, в работах [3...10]. Синхротронное излучение после тщательной монохроматизации с использованием кристаллов (обычно используется не менее двух последовательно установленных монохроматоров) часто используется как достаточно интенсивный источник монохроматического рентгеновского излучения.

В последнее время появился особо мощный источник импульсного рентгеновского излучения – лазер на свободных электронах. Обратный комптон-эффект, также называемый обратным комптоновским рассеянием, происходит при столкновении оптических фотонов с ультрарелятивистскими электронами описан, например, в работах [11...19]

Тем не менее, из-за сложности и громоздкости аппаратуры синхротронное излучение и излучение лазеров на свободных электронах используется сравнительно редко.

В рамках данной работы подробно будут рассматриваться только радиоизотопные источники и рентгеновские трубки.

1.2.1. Радиоизотопные источники.

Радиоизотопные источники, как правило, сильно проигрывают мощным (несколько кВт электрической мощности) рентгеновским трубкам по интенсивности излучения, поэтому чаще всего используются в энергодисперсионных спектрометрах, где отсутствуют потери на кристалл-анализаторах. Такие источники отличаются надежностью и портативностью и обеспечивают выход излучения порядка $10^7 - 10^8$ фотонов в секунду, что достаточно для решения многих аналитических задач в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе.

Список радиоизотопных источников рентгеновского излучения приведен, например, в работах [20, 21]. Схемы распада радиоактивных ядер рассматриваются, например, в работе [22].

Радиоизотопные источники обычно разделяют на две основные группы: источники с линейчатыми спектрами и источники с тормозным или смешанным излучением [20]. К первой группе относятся те радиоизотопы, для которых характерен К-захват, изомерный переход или α -распад, ко второй группе - β распад. Как правило, источники первой группы дают почти монохроматическое рентгеновское или гамма излучение, с выходом от долей до почти одного фотона на распад. Среди α -активных радиоизотопов наиболее широко используются ^{238}Pu и ^{241}Am . Менее удобны для рентгенофлуоресцентного анализа источники фотонов на основе β -излучателей. В таких источниках рентгеновское излучение возникает при торможении β -электронов атомами элемента – мишени или конструктивными деталями источника.

Основной проблемой при описании фона, возникающего при использовании радиоизотопных источников, является достаточно плохая изученность их спектрального состава и полных процессов диссипации энергии распада, за исключением основных линий излучения.

1.2.2. Взаимодействие пучка электронов с веществом. Рентгеновские трубки.

1.2.2.1. Взаимодействие пучка электронов с веществом.

Варианты уравнений, описывающих взаимодействие пучка электронов с веществом даны в [23...26].

Способность вещества тормозить падающие на него электроны характеризуется тормозной способностью S :

$$S = -\frac{1}{\rho} \frac{dE}{ds}, \quad (1.1)$$

где dE - средняя потеря энергии при прохождении пути ds , ρ - плотность вещества.

При расчетах тормозной способности используются, как правило, формулы Бете [23] и Томсона - Уидингтона [27, 28].

Формула Бете описывает средние потери энергии на единицу пути и плотности и для нерелятивистского приближения имеет вид:

$$-\frac{dE}{d(\rho x)} = \frac{4\pi e^4 N_A Z}{A} \frac{1}{E} \ln\left(\frac{1166E}{J}\right), \quad (1.2)$$

где J - средний потенциал ионизации.

Для нахождения J [29] используют формулы Блоха [30] (здесь J - в эВ):

$$J = 13,5Z, \quad (1.3)$$

Данкамба-Шилдс-Да Каза [31]:

$$\frac{J}{Z} = 14[1 - e^{-0,1Z}] + \frac{75,5}{Z^{Z/7,5}} - \frac{Z}{100 + Z}, \quad (1.4)$$

Бергера-Зельтцера [32]:

$$\frac{J}{Z} = 9,76 + 58,8Z^{-1,19}. \quad (1.5)$$

и другие.

Также наряду с константой 13,5 эВ встречается константа 11,5 эВ [33...35]

Формула Бете имеет ограниченную область применения и не может применяться в случае $E < J/1,166$.

Выражение Томсона-Уидингтона применимо для расчета пробега и средних потерь энергии электронов в образце:

$$-\frac{dE}{d(\rho x)} = \frac{b}{2E}, \quad (1.6)$$

где $b = \frac{4\pi e^4 Z \rho l N_A}{A}$, при $l \approx 6$.

Путь по этой формуле характеризует максимальную глубину проникновения электронов в образец. Этот путь меньше, чем путь, найденный по формуле Бете, и считается, что формула Бете учитывает траекторный пробег электронов [25].

Тормозное рентгеновское излучение возникает, в случае, когда электрон тормозится в поле атомного ядра. Вероятность таких взаимодействий описывается полуклассической формулой сечения возбуждения Крамерса [36]:

$$\sigma(E) = \frac{16\pi^2 e^2 Z^2}{3\sqrt{3}mc^3 E} = const \frac{Z^2}{E} \quad (1.7)$$

Считая процесс торможения электронов почти непрерывным, получают

$$\frac{dN}{dE} = const \frac{\lambda}{hc} \frac{N_A Z^2}{A} \int_0^{\infty} \frac{1}{E} d(\rho s) \quad (1.8)$$

При использовании выражения Томсона-Уидингтона для определения пробега электронов спектральный состав тормозного излучения имеет вид [34]:

$$\frac{dN}{dE} = k_e \frac{\lambda}{hc} Z(E_0 - E), \quad (1.9)$$

где $k_e = \frac{8\pi}{3\sqrt{3}} \frac{1}{mc^3 e^2 l \rho}$

Тогда

$$\frac{dN}{d\lambda} = k_e \frac{\lambda}{hc} \frac{dE}{d\lambda} Z \left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda} \right) \frac{1}{\lambda^2} = const \cdot Z \left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda} \right) \frac{1}{\lambda} \quad (1.10)$$

Модифицированное [34] выражение (1.10) будет использовано для описания тормозного излучения электронов высоких энергий, возникающих в образце. Под «электронами высоких энергий» будем понимать электроны с энергиями более 100-200 эВ, которые способны

ионизировать вещество, в отличие от свободных электронов тепловых энергий.

В работах [37, 38] тормозное излучение разделяется на обычное тормозное излучение, описываемое теорией Бете – Хейтлера [39] и поляризованное тормозное, описываемое в работах [40, 41]. В работе [38] показано, что различие в сечениях взаимодействия, описываемых [37, 39, 41] в среднем составляет около 10%, и может достигать 30% в области, близкой к энергии возбуждающих электронов. В работе [42], касающейся попытки разделения вкладов обычного тормозного и поляризованного тормозного излучения при рентгеновских энергиях фотонов до 50 кэВ поляризованного излучения выделено не было. Можно считать, что подобный учет дополнительного сечения поляризованного тормозного излучения пока является преждевременным, до практического подтверждения его существенности в рентгеновской области излучения.

1.2.2.2. Рентгеновские трубки с заземленным анодом.

Основной целью при конструировании рентгеновских трубок для возбуждения флуоресценции, является получение мощного пучка фотонов.

Классическими являются конструкции трубок, показанные на рис. 1.3.

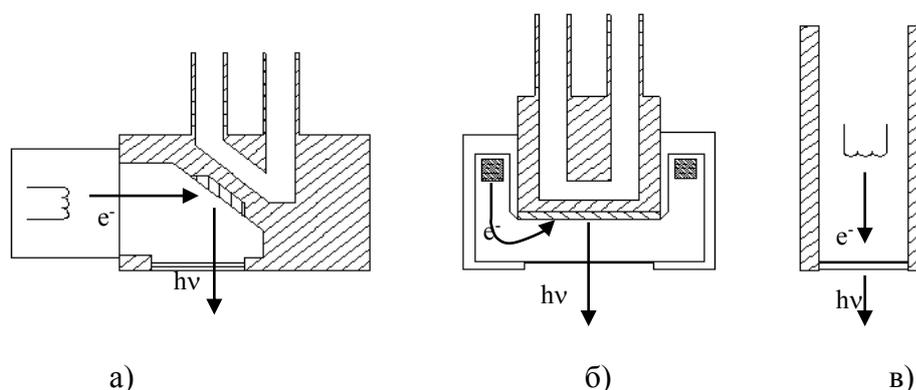


Рис. 1.3. Классические схемы рентгеновских трубок для рентгенофлуоресцентного анализа.

В трубке, показанной на рис. 1.3а высокое напряжение подается на катод трубки относительно заземленного анода и окна трубки. С точки зрения конструкции силовой электроники и системы водяного охлаждения мощной рентгеновской трубки подобная система получается наиболее простой. Электроны высоких энергий, попав на анод трубки, частично рассеиваются, интегральный коэффициент рассеяния электронов при этом составляет величину порядка от 30% (для Cr) до 70% (для W) [27]. Рассеянные электроны, максимум энергий которых составляет 60-80% от начальной энергии электронов в пучке, попадают на окно трубки, соединенное с анодом и заземленное, и, естественно, разогревают его. Толщина окна в таких трубках составляет 200-300 мкм и не может быть при такой конструкции уменьшена. Конструктивной разновидностью такого вида трубок являются трубки с цилиндрическим и коническим анодами.

В универсальных современных спектрометрах требуется возбуждение элементов с малыми Z , для чего необходимо уменьшение толщины W_e окна, поглощающее мягкое излучение. Для этого используются рентгеновские трубки с заземленным катодом (рис. 1.3 б). В таких трубках катод и выходное бериллиевое окно трубки заземляют, а на анод подают высокое ускоряющее напряжение. При этом обратнорассеянные анодом электроны не могут достичь выходного окна, находящегося под потенциалом земли (катода), что позволяет уменьшить нагрев выходного окна и, соответственно, его толщину. Такие трубки широко применяются в спектрометрах (ARL-9800, СРМ-25М и др.).

На рис. 1.3 в, показана конструкция малогабаритных рентгеновских трубок мощностью до нескольких ватт. При такой конструкции тонкий слой материала анода наносится непосредственно на поверхность W_e окна. Трубки получили название трубок с прострельным анодом. Основной областью применения этих трубок являются спектрометры с энергетической дисперсией. Особенности конструкции и спектральный состав подобных трубок описан, например, в работах [43, 44].

Экспериментальные данные, касающиеся спектров рентгеновских трубок, приведены, например, в работах [45, 46].

В алгоритмах расчета спектров изучения рентгеновских трубок, используемых в РФА, спектр тормозного излучения удовлетворительно описывается формулой Крамерса [36] с коррекцией на обратное рассеяние электронов и поглощение возникшего излучения в аноде и окне трубки [34].

Пусть E_0 – энергия электронов, E_v – рассматриваемая энергия спектра. На основании аппроксимации [47] в работах [48, 49] показано, что распределение тормозного излучения может быть описано выражением $\frac{dN}{dE} = const \frac{E_0 - E_v}{E_v^{1+\alpha}}$, где параметр α определяет отклонение от закона Крамерса. Выражение для интенсивности тормозного излучения в единицах фотон/(электрон*ср*ангстрем) принимает вид [50]:

$$I(\lambda) = 2,72 \cdot 10^{-6} \cdot Z \cdot \left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda} \right) \frac{1}{\lambda} f(\chi) W_a \quad (1.11)$$

В работах [51, 52] приводится выражение для расчета интенсивности тормозного излучения (при этом считается, что выражение справедливо для $6 \leq Z \leq 82$ и энергиях 3-30 кэВ),

$$N(E) = const \cdot Z \cdot \left(\frac{E_0}{E} - 1 \right)^x W_a, \quad (1.12)$$

в работе [34]

$$N(\lambda) = 7,52 \cdot 10^{-5} \cdot Z \cdot \left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda} \right) \frac{1}{\lambda} B(\lambda) \frac{T}{L} f(\chi) R \frac{1}{4\pi} W_a \quad (1.13)$$

$$\text{где } T = \pi / \sqrt{3}, \quad B(\lambda) = \left(\frac{\lambda}{2\lambda_0} \right)^\alpha;$$

λ – длина волны тормозного излучения, λ_0 – коротковолновая граница тормозного спектра, Z – атомный номер элемента анода,

$$L = \ln \left(\frac{1166}{J} \frac{2E_0 + E_v}{3} \right), \quad J – \text{средний потенциал ионизации (эВ),}$$

принятый в работе [34] равным $J = 11,5 \cdot Z$ (значения E_0 и E_v – в кэВ). Функция $B(\lambda)$ масштабирована для того, чтобы сохранить положение максимума по длинам волн в соответствии с эмпирическим выражением

$\lambda_{\max} = 2\lambda_0$. По данным работ [48, 49] α имеет слабую зависимость от Z : ее величина для Cr равна 0,23; для Rh – 0,17.

Поправка на поглощение в аноде по Филиберту [53] равна:

$$f(\chi) = \frac{1}{\left(1 + \frac{\chi}{\sigma}\right) \cdot \left(1 + \frac{h}{1+h} \frac{\chi}{\sigma}\right)}, \quad (1.14)$$

$$h = \frac{1,2A}{Z^2}; \quad \chi = \frac{\mu}{\sin(\psi)}; \quad \psi - \text{угол отбора излучения анода};$$

$$\sigma = \frac{4,0 \cdot 10^5}{E_0^{1,65} - E_v^{1,65}} \text{ для тормозного спектра.}$$

Обзор других вариантов поправок на поглощение в аноде дан в работе [54]. Необходимо отметить, что при всех вариантах поправки на поглощение ее значение близко к единице в области максимума спектрального распределения $N(\lambda)$. Максимум этого распределения достаточно существенно (около 20%) смещается при переходе от трубки с заземленным анодом к трубке с заземленным катодом, и связывать это только с изменением поправки на поглощение было бы неправильно.

Расчеты, выполненные с помощью метода Монте-Карло, показывают [55], что поправку по Филиберту можно использовать как для тормозного, так и характеристического излучения, а имеющиеся различия являются несущественными.

Функция W_a , учитывает поглощение излучения в Ве окне трубки:

$$W_a = e^{-\mu_{Be} \cdot \rho_{Be} \cdot d_{Be}} \quad (1.15)$$

$$\mu_{Be} = 0,35 \cdot \lambda^{2,86} \quad (1.16)$$

Функция W_a имеет значение 0.1 в мягкой области при энергии 1.4 кэВ (75 мкм Ве окно) и 2.2 кэВ (300 мкм Ве окно) и очень резко падает с уменьшением энергии.

R – коэффициент, необходимый для коррекции интенсивности с целью учета обратнорассеянных электронов.

Энергетическое распределение для обратнорассеянных электронов может описываться формулой [56]:

$$\left(\frac{dN_e}{dE}\right) = \frac{n_0}{E_0} \Phi(E, E_0, Z) \quad (1.17)$$

$$\Phi(E, E_0, Z) = a \left\{ 0.27 \left(\frac{E}{E_0} \right)^{0.02Z} + \left(1.1 + \frac{5}{Z} \right) \left[\left(\frac{E}{E_0} \right)^{0.1Z} - 1.1 \left(\frac{E}{E_0} \right)^{0.4Z} \right] \right\}, \quad (1.18)$$

где

$$a = Z \left\{ -0.00391 \ln(Z+1) + 0.00721 [\ln(Z+1)]^2 - 0.001067 [\ln(Z+1)]^3 \right\} \times F(E_0),$$

$$F(E_0) = \left(\frac{E_0}{30} \right)^{-0.25+0.0787 \times Z^{0.3}}$$

$$\text{В этих условиях } R = 1 - \int_0^{E_0} \left(\frac{dN_e}{dE} \right) dE \quad (1.19)$$

Выражение для интенсивности характеристического спектра в единицах фотон/(электрон*ср) может быть представлено в видах (1.20) [57, 58] и (1.21) [59].

$$N_i = k \varpi_q P_{iq} \frac{1}{Ac} (U \ln U - (U-1)) \cdot f(\chi) R W_a (1 + \Delta_q), \quad (1.20)$$

где A - атомный вес, c - фактор, включающий останавливающую силу и слабо зависящий от энергии, k - константа;

$$N_i = \varpi_q P_{iq} \frac{n_q b_q}{2Z} (U \ln U - (U-1)) \cdot \frac{1}{L} f(\chi) R W_a \frac{1}{4\pi} (1 + \Delta_q), \quad (1.21)$$

где n_q - число электронов на q уровне ($n_k=2, n_L=8$);

b_q - параметр сечения ионизации q ой оболочки, $b_k=1,73 \cdot 0,35$ [60],

$$b_L = \frac{A}{Z-B} + C + DZ \text{ по [61]} \quad (1.22)$$

$$A=2,519; B=26,6; C=-0,0968; D=0,0103;$$

$$U = \frac{E_0}{E_q}; L = \ln \left(\frac{1166}{J} \frac{2E_0 + E_q}{3} \right); \sigma = \frac{4,5 \cdot 10^5}{E_0^{1,65} - E_v^{1,65}} \text{ для характеристического}$$

спектра; Δ_q - поправка на флуоресценцию, возбужденную тормозным излучением анода [34].

В работах [62, 63] для моделирования спектра излучения рентгеновской трубки используется метод Монте-Карло. Этот же способ моделирования в программах PENELOPE и MCSHAPE описан в недавних работах [64, 65]. В них также показано, что отсутствие учета влияния детектора не позволяет добиться согласия расчетного и экспериментального спектров в области низких энергий, и в таком случае ошибка описания фона в этой области наблюдается несколько

раз, причем детально процессы переноса в детекторе в статьях не рассматриваются.

Неопределенность отношения суммы интенсивностей характеристического излучения к интенсивности тормозного излучения для К-серии около 10 %; для L серии – порядка 20 %. Абсолютная интенсивность, вычисленная по данным формулам дает ошибку около 30 % в диапазоне напряжений рентгеновской трубки 10-45 кэВ [34], что в данной работе связывается с неучтенными особенностями конструкции трубок.

В некоторых случаях после окна рентгеновской трубки дополнительно ставят фильтры первичного излучения, состоящие из тонких слоев металлических пленок, что в некоторых случаях приводит к существенному уменьшению фона. Например, в работе [66] при использовании энергодисперсионного спектрометра с Rh трубкой, работающей при напряжении на трубке 50 кэВ, Si(Li) детектором, Ni, Ti фильтров толщиной до 125 мкм при применении фильтров было отмечено улучшение предела детектирования примерно в 10 раз на линии Pb $L\beta_1$ в латуни.

Поляризация рентгеновского излучения была обнаружена Баркла в 1905 г. Для получения поляризованного излучения в пучок излучения рентгеновской трубки ставят поляризатор, например [67]. В качестве поляризаторов используют плоские, цилиндрические или сферические объекты из хорошо рассеивающего вещества (обычно графита), на которые излучение падает через входной коллиматор и отбирается через выходной коллиматор при угле рассеяния 90° . Спектр полученного после поляризатора излучения рассмотрен, например, в работе [68].

Вклад обратно рассеянных электронов в возбуждение характеристического рентгеновского излучения был качественно оценен в 1968 году в работе [69].

В работе [46] было отмечалось увеличение в 2-3 раза интенсивности длинноволновой составляющей рентгеновского излучения относительно излучения трубок с боковым окном (которое не может быть объяснено только увеличением поглощения излучения в аноде трубки), а также

примерно 20% сдвиг максимума спектра трубки в длинноволновую область. Следует отметить, что количественного расчета подобных процессов до наших работ не было.

1.2.3. Возбуждение флуоресценции тяжелыми заряженными частицами

В ряде случаев для возбуждения флуоресценции используются пучки тяжелых заряженных частиц – протонов и альфа-частиц с энергиями несколько МэВ [70]. Основным достоинством такого метода является сравнительно низкий фон от тормозного излучения таких тяжелых частиц [71] в районе возбуждаемой линии, что позволяет применять подобное возбуждение для прецизионных экспериментов по измерению функции отклика детектора и мертвого слоя детектора, основным недостатком – громоздкость соответствующей аппаратуры и защиты. При применении метода возбуждения флуоресценции с помощью пучка протонов с энергией 3 МэВ [72] предел обнаружения Pd в сплаве серебра улучшается примерно на порядок по сравнению с возбуждением с помощью фильтрованного излучения рентгеновской трубки. Фон при таком способе возбуждения обуславливается не только тормозным излучением тяжелых частиц, но и тормозным излучением электронов высоких энергий, образующихся при торможении ионов [73]. При торможении альфа частиц с энергией 2 МэВ в области энергий менее 10 кэВ преобладает именно такое тормозное излучение, причем его интенсивность на несколько порядков больше, чем интенсивность тормозного излучения ионов.

1.3. Сечения взаимодействия излучения с веществом

Обзор процессов взаимодействия излучения с веществом в рентгеновской области излучения приведен, например, в работе [74]. Общая картина многократных взаимодействий в области рентгеновского спектра приведена на рис. 1.4 [75]. Согласно выводу этой работы, задача полного решения транспортного уравнения должна содержать

энергий гамма излучения в несколько МэВ, поэтому будут рассмотрены и сечения рождения электронно-позитронных пар.

В рамках данной работы также будут введены дополнительные упрощения, характерные для обычного рентгенофлуоресцентного анализа: будут рассмотрены только процессы с неполяризованным рентгеновским излучением, как в рамках сечений рассеяния, так процессов в спектрометрах.

Далее рассмотрим процессы, отображенные на рис. 1.4.

1.3.1. Процесс фотопоглощения.

Рассматривая процесс фотоэлектрического поглощения с точки зрения нерелятивистской квантовой электродинамики (взаимодействие фотона с электроном К-оболочки в кулоновском поле), для атомного сечения взаимодействия получают выражение [77, 78]:

$$\sigma_a \cong 32\lambda \cdot r_0 \left(\frac{4}{3}\right) \left[\frac{\lambda}{\lambda_K}\right]^{2.5} f(\xi), \quad (1.23)$$

$$\text{где } \xi = \sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_K - \lambda}}, \quad f(\xi) = \sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_K}} \left(\frac{e^{-4\xi \operatorname{arccot} \xi}}{1 - e^{-2\pi\xi}} \right). \quad \lambda_K - \text{длина волны К края}$$

поглощения

Согласно работе [79], в настоящее время для описания коэффициента фотопоглощения используются следующие основные виды аппроксимаций:

$$- \tau = C\lambda^n, \quad (1.24)$$

n лежит в пределах $2.5 \div 3$ [80...83];

$$- \tau = \tau_0 + \tau_1 E^{-1} + \tau_2 E^{-2} + \tau_3 E^{-3} + \tau_4 E^{-4} \quad (1.25)$$

в работах [79, 84].

В табличном виде коэффициенты поглощения приведены в работах [85...89].

Неопределенность коэффициентов ослабления оценивается в работе [90] следующими величинами: 100-200% для области энергий 0,1-0,5 кэВ, 10-20% для области энергий 0,5-1 кэВ, 5% для области 1-5 кэВ и 2% для области энергий 5-100 кэВ.

Проблемы, связанные с определением массовых коэффициентов ослабления для Si и C в области энергий 6-60 кэВ рассмотрены в работах [91, 92] соответственно.

1.3.2. Естественные ширины атомных уровней.

Систематизация характеристического рентгеновского спектра приведена, например, в работе [93].

Для изучения контрастности флуоресцентной линии необходимо знать как ее ширину, так и ширину участка спектра, захватываемого спектрометрическим каналом. Последнее необходимо для их сопоставления. Переход возбужденного атома [94] в основное состояние возможен как с испусканием фотона, так и с помощью других процессов [95, 96]. В 1925 Auger [97], используя пузырьковую камеру, привел доказательства, что возможна разрядка атома с испусканием электрона постоянной энергии. Кроме того, возможны переходы Костера-Кронига, происходящие между подуровнями оболочки с одним и тем же главным квантовым числом [98]. Пусть Γ_R/\hbar – вероятность радиационного перехода; Γ_A/\hbar – вероятность Оже – перехода; Γ_{CK}/\hbar – вероятность перехода Костера – Кронига. Таким образом, общая ширина уровня равна $\Gamma = \Gamma_R + \Gamma_A + \Gamma_{CK}$, а выход флуоресценции равен

$$\omega = \frac{\Gamma_R}{\Gamma} \quad (1.26)$$

В соответствии с квантово-механическими результатами, форма линии радиационного перехода между состояниями А и В описывается выражением [94]:

$$I(\omega)d\omega = \frac{\Gamma(A) + \Gamma(B)}{2\pi\hbar} \frac{d\omega}{(\omega_{AB} - \omega)^2 + \left(\frac{\Gamma(A) + \Gamma(B)}{2\hbar}\right)^2}, \quad (1.27)$$

где $\omega_{AB} = \frac{E_A - E_B}{\hbar}$ - круговая частота основного перехода.

В работе [99] предложена эмпирическая формула для описания ширины К уровней, эВ,

$$\Gamma(K) = 1.73 * Z^{3.93} * 10^{-6}, \quad (1.28)$$

которая хорошо описывает ширину линии при $Z > 37$. Ширины L уровней по работе [99] составляют 1-12 эВ и представлены в указанной работе рисунком. Скачки ширины уровня L_1 возникают при переходе из областей, где переходы Костера Кронинга энергетически возможны, в области, где они энергетически невозможны. Таким образом, ширина К-линий составляет от нескольких электрон – вольт при $Z=30..40$ до нескольких десятков электрон вольт при $Z=60-80$, а «добротность», т.е. $(E_L - E_k) / (\Gamma(K) + \Gamma(L_i))$, имеет порядок 10^3 .

Следует отметить, что форма спектральной линии является лоренцовой, а не гауссовой, что применительно к спектрам, регистрируемым энергодисперсионными спектрометрами означает дополнительное уширение линий на их краях по сравнению с гауссовой формой.

С точки зрения конструирования спектрометрического канала с волновой дисперсией для измерения интенсивности линии не имеет большого смысла увеличивать «добротность» спектрометрического канала выше некоторой величины, соответствующей ширине спектральной линии, поскольку при наличии некоторого непрерывного фона в области линии будет уменьшаться ее интенсивность без изменения контрастности.

В случае флуоресценции L оболочки необходим учет как флуоресценции в результате фотоэффекта на L оболочке, так и в результате каскадных переходов [100].

1.3.3. Процесс когерентного (релеевского) рассеяния.

Представляя рентгеновский фотон с энергией E_1 как электромагнитную волну, то свободный покоящийся электрон, находящийся в зоне распространения волны, начнет колебаться и излучать с такой же частотой (см., например, [101]). Когерентно рассеянное излучение имеет ту же поляризацию, что и вызвавшее его излучение. Классическая электродинамика позволяет для неполяризованного излучения оценить сечение взаимодействия со свободным электроном и получить формулу Томсона [102]:

$$\frac{d\sigma_e^T}{d\Omega} = r_0^2 \frac{1 + \cos^2 \Theta}{2}, \quad (1.29)$$

В атомах электроны образуют электронные облака, размеры которых индивидуальны для каждого атома, а рассеяние дает сложную интерференционную картину. При решении задачи для двух электронов, равномерно распределенных внутри сферического слоя диаметра s , на основе классической электродинамики получается интенсивность рассеяния таким слоем [103].

$$I_s^{2e} = 2 \frac{d\sigma_e^T}{d\Omega} \left(1 - \frac{\sin \xi}{\xi}\right) \quad (1.30)$$

$$\text{где } \xi = \frac{4\pi s}{\lambda_1} \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right)$$

Для одноэлектронного атома дифференциальное сечение когерентного рассеяния вычисляется по формуле [103, 104].

$$\frac{d\sigma_{at}^K}{d\Omega} = \frac{d\sigma_e^T}{d\Omega} f^2, \quad (1.31)$$

$$\text{где } f = \int_0^\infty p(r) \left[\frac{\sin \zeta r}{\zeta r} \right] dr \quad - \quad \text{фактор электронной структуры,}$$

представляющий собой отношения амплитуд электрического вектора электромагнитных волн, рассеянных на одноэлектронном атоме и на свободном покоящемся электроне, $p(r)$ - вероятность нахождения электрона в шаровом слое между сферами радиусов r и $r+dr$ (квадрат радиальной части волновой функции электрона). Для многоэлектронного атома суммируются факторы f всех оболочек, и рассчитывается атомный форм-фактор $F_{at_coh} = \sum_{i=1}^Z f_i$. Для расчета атомного форм-фактора нужно знать волновые функции электронов атома. Задача решается на основе квантовой механики по методу Хартри – Фока с представлением результатов в виде таблиц [105]. В указанной работе использованы сечения работ [106...108] и других. Возможны расчеты на основе приближенного метода Томаса-Ферми, при котором атомный форм-фактор зависит от аргумента $g = \frac{5,91}{\lambda} \sin \frac{\Theta}{2} Z^{-1/3}$, при этом получается простая аппроксимирующая формула [101]

$$F_{at_coh} \approx Z(e^{-g} + 0.12), \quad (1.32)$$

а сечение когерентного рассеяния атомом вычисляется как

$$\frac{d\sigma_{coh_at}}{d\Omega} = \frac{d\sigma_e^T}{d\Omega} F_{at_coh}^2 \quad (1.33)$$

В качестве других источников табулированных факторов можно использовать [109...111]. Табулированные дифференциальные коэффициенты рассеяния для некоторых длин волн приведены, например, в работе [112].

Следующим приближением является релятивистское приближение [113...115], с учетом моментов электронов, обзор которого дан в работе [116].

Вблизи краев поглощения существуют зоны аномального рассеяния, что может быть учтено введением поправок в атомный фактор, например, [101]. В зонах с аномальной дисперсией (вблизи краев поглощения) атомный фактор рассеяния может быть записан как

$$F_{at_coh_1}(q, z) = F_{at_coh}(q, z) + f' + if'', \quad (1.34)$$

где f' и f'' – реальная и мнимая (аномальная) части коррекции на дисперсию. Рассмотрение этого фактора также выполнено в работах [117, 118]. Расчет подобной поправки обычно предполагает отказ от приближения самосогласованного поля Хартри-Фока и основан на использовании релятивистских S-матриц [119...121].

Экспериментальные данные по когерентному рассеянию под углом 90 градусов приведены в работе [122] для Pt, Au, Pb. В ней сделан вывод о том, что для данных металлов в диапазоне энергий 16.58-42,75 кэВ при таком угле рассеяния различие между экспериментальными данными, и данными, рассчитанными на основе S матриц [119] не превышает 7%, вклад поправки f' имеет порядок 11% от F_{at_coh} , а вклад f'' меньше, чем 2% от F_{at_coh} . Экспериментальные данные по когерентному рассеянию излучения с энергией 14.93 кэВ под углом 141° приведены в работе [123]. Подобные углы рассеяния характерны для рентгенофлуоресцентного анализа с радиоизотопным возбуждением. В этой работе также сделан вывод о том, что для когерентного рассеяния результаты дают лучшее согласие с расчетами на основе S матриц [119].

Следует отметить, что экспериментальные данные обычно приводятся только для фиксированного угла рассеяния, в то время как для расчетов, касающихся детектора, требуются дифференциальные сечения рассеяния одновременно по всем углам рассеяния.

1.3.4. Когерентное рассеяние при наличии кристаллической решетки.

В 1912 г. в лаборатории Лауэ [124] исходя из геометрических соображений и экспериментальных данных по дифракции рентгеновского излучения на кристаллах были получены уравнения, связывающие геометрию элементарной ячейки кристалла и трехмерное распределение интерференционных максимумов, возникающих в результате дифракции.

Вследствие дальнейших упрощений, основанных на рассмотрении кристаллов как набора плоскостей, независимо Бреггами [125, 126] и Вульфом [127], было получено уравнение

$$n \cdot \lambda = 2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin(\theta_{hkl}), \quad (1.35)$$

где hkl – индексы Миллера, а d_{hkl} – расстояние между кристаллографическими плоскостями с соответствующими индексами, n – порядок отражения.

1.3.5. Процесс комптоновского (некогерентного) рассеяния.

Процесс комптоновского рассеяния можно рассматривать, представив первичный фотон как частицу с энергией $E_1 = h\nu_1$ и импульсом $p = \frac{h\nu_1}{c}$ [103, 128]. В соответствии с законами сохранения после рассеяния фотона на электроне энергия фотона определится формулой Комптона

$$E_s^{incoh} = \frac{E_1}{1 + \frac{E_1}{m_0 c^2} (1 - \cos \Theta)}, \quad (1.36)$$

а сечение рассеяния определяется на основе квантово-механических подходов, приводящих к Клейна – Нишины – Тамма [129]:

$$\frac{d\sigma_{KNT}}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} \left(\frac{E_S}{E_1} \right)^2 \left(\frac{E_S}{E_1} + \frac{E_1}{E_S} - \sin^2 \Theta \right) \quad (1.37)$$

Вероятность некогерентного рассеяния на атоме учитывается значением функции некогерентного рассеяния. Дифференциальное сечение некогерентного рассеяния атомом равно (см., например, [103])

$$\frac{d\sigma_a^{incoh}}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{KNT}}{d\Omega} ZS \quad (1.38)$$

Функция некогерентного рассеяния S при таком подходе вычисляется при помощи метода Хартри-Фока [130, 131]. Приближенный метод расчета Томаса – Ферми представляет S как функцию от аргумента $\nu = \frac{2,21 \sin(\Theta/2)}{Z^{2/3} \lambda}$. Функция вида $S(\nu) = 1 - e^{-5\nu}$

хорошо описывает поведение S [132], что позволяет аппроксимировать:

$$\frac{d\sigma_a^{incoh}}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{KNT}}{d\Omega} Z(1 - e^{-5\nu}) \quad (1.39)$$

Оценка необходимости использовать более сложные методы для расчета S , основанные на квантово - механических расчетах теории S -матриц [133...136] дана в работе [137]. В работе приводится мнение, что нерелятивистские величины $S(x, \Theta)$ работы [105] неотличимы [138] в настоящее время от результатов, полученных с использованием « S матриц» (функции $S(E, \Theta, Z)$), и находятся в пределах ошибок обычных экспериментов. Считается, что в дальнейшем они будут заменены на релятивистские $S(x, \Theta)$ [139]. В работе [140] выполнены измерения функции некогерентного рассеяния при угле рассеяния 110° , и сделан вывод о том, что экспериментальные данные при этом угле имеют большое среднеквадратическое отклонение и неотличимы от расчетных данных работ [105] и [139].

Другим важным следствием связанности электронов является расширение линии некогерентного рассеяния. В работе [103] показано, что ширина линии некогерентного рассеяния δE на половине ее максимума зависит от энергии связи E_{ce} и энергии ΔE , отдаваемой фотоном электрону. Соотношение величин энергий приближенно определяется [141, 142] формулой Вентцеля

$$\frac{\delta E}{\Delta E} = \sqrt{\frac{E_{ce}}{\Delta E}} \quad (1.40)$$

и существенно для хорошо коллимированных пучков при соизмеримых энергиях ΔE и E_{ce} . Из работы [137] следует, что доплеровское уширение может [143] и должно быть учтено, однако часть формы линии комптоновского рассеяния существенно зависит от химических связей и систематизировать ее в настоящее время весьма затруднительно.

Роль некогерентного рассеяния при ионизации внутренних оболочек рассмотрена, например, в работах [144, 145].

В работе [146] приведена формула сечения Комптоновского рассеяния с учетом момента рассеивающих электронов:

$$\frac{d\sigma_{comp}}{dE \cdot d\Omega} = \frac{r_0^2 \cdot m_e \cdot c \cdot E_2 \cdot (1 - E_{ph}/m_e \cdot c^2) \cdot B}{A_1(E_{ph} + E_2)^2 (1 + (E_{ph} - E_2)/m_e c^2)} J(q) \quad (1.41)$$

$$B = \left(\frac{E_{ph} A_1}{E_2 A_2} + \frac{E_2 A_2}{E_{ph} A_1} - \frac{4}{A_1 A_2} + \frac{4}{A_1^2 A_2^2} \right)$$

$$A_1 = 1 + \frac{q}{m_0 c}$$

$$A_2 = 1 - \frac{q}{m_e c}$$

$$q = \frac{-137(E_{ph} - E_2 - E_{ph} E_2 (1 - \cos(2\Theta)) / m_e c^2)}{(E_{ph}^2 + E_2^2 - 2E_{ph} E_2 \cos(2\Theta))^{1/2}},$$

где E_2 – энергия Комптоновски рассеянного фотона, $J(q)$ – поправка на момент электрона, приведенная в данной работе для алмаза, кремния и германия и учитывающая влияние как электронов внутренних оболочек, так и внешних электронов в некоторых кристаллических плоскостях. В работе [137] подобные методы расчета [146, 147] классифицированы как расчеты с учетом магнитного момента (magnetic Compton scattering или spin-dependent Compton scattering).

В работе [148] экспериментально было рассмотрено комптоновское рассеяние в проводящем (Fe) и полупроводящем (p-Si) образце в сильном магнитном поле (215 Гаусс) при прохождении через образец электрического тока и энергии первичного излучения 59.54 кэВ.

Интенсивность рассеяния в таких условиях может изменяться на величину до 10%, что связывается с распределением момента электронов в сильных внешних магнитных полях.

Описание рассеяния поляризованного излучения на основе решений транспортного уравнения дано в обзоре [75]. В рамках данной работы не будем детально рассматривать источники поляризованного излучения и соответствующие сечения рассеяния, чтобы не усложнять вычисления.

В работе [123] приведены результаты измерений дифференциальных сечений комптоновского рассеяния излучения с энергией 14,93 кэВ при угле рассеяния 141° . В работе сделан вывод о том, что при таких условиях измерения хорошо ($\pm 10\%$) работает аппроксимация работы [105]. Однако представленная зависимость только от атомного номера и при конкретном угле рассеяния вряд ли говорит о том, что и при остальных углах рассеяния расчеты по указанной работе также будут давать хорошие результаты.

В работе [149] были измерены дифференциальные сечения когерентного и Комптоновского рассеяния для Cu и Zn мишени, для углов рассеяния 40-135 градусов. Наблюдаются расхождения 1-16,5% с результатами расчетов по работе [105] (non relativistic form factor), 1-15% с результатами расчетов [116] (relativistic form factors) и 1-7,6% с результатами расчетов [150] (relativistic modified form factors).

Из вышеприведенных данных ясно, что дифференциальные сечения рассеяния также нуждаются в уточнении, а недостаточная точность дифференциальных расчетных сечений комптоновского рассеяния будет в дальнейшем ограничивать точность вычислений данной работы.

1.3.6. Процесс образования электронно-позитронных пар.

В области гамма излучения при энергиях фотонов более 1,022 МэВ в процессы рассеяния и поглощения излучения веществом включается также процесс рождения электронно-позитронных пар. Данный процесс вместе с соответствующим сечением рассматривается в рамках расширения результатов расчетов параметров детекторов на низкоэнергетическую область гамма излучения.

Вероятность рождения электронно-позитронных пар в области энергий до 2,5 МэВ оценивалась по формуле

$$\frac{dP_{e^+e^-}}{dl} = \rho \frac{N_A}{A} \cdot \sigma_{BH} \cdot K(Z), \quad (1.42)$$

где σ_{BH} - сечение Бете – Хейтлера [39, 151, 152].

Поправка $K(Z)$ для сечения в области низких энергий, связанная с экранированием атомного ядра электронами, может быть взята согласно данным работы [153].

Следует отметить, что в области рассматриваемых в данной работе экспериментальных данных (до 10 МэВ) сечение рождения электронно-позитронных пар меньше сечения Комптоновского рассеяния [154].

1.4. Математические методы изучения переноса излучения.

1.4.1. Транспортный подход.

Перенос фотонов может быть рассмотрен как перенос энергии [155] радиационного поля частицами, не имеющими массы – фотонами. Во время t для определения характеристик фотона с энергией E в фазовом пространстве требуется 6 переменных – три из которых определяют его координату, еще три – направление и поляризацию (см. рис. 1.5).

В терминах этого фазового пространства может быть введена функция распределения f

$$f \equiv f(r, E, \Omega, t) \quad (1.43)$$

и количество фотонов dn в объеме фазового пространства

$$dn = f \cdot dr \cdot dE \cdot d\Omega \quad (1.44)$$

$$dn = f(x, y, z, E, \Theta, \varphi) \cdot dx \cdot dy \cdot dz \cdot dE \cdot d\varphi \cdot \sin \Theta \cdot d\Theta \quad (1.45)$$

Интенсивность переноса энергии может быть определена как

$$I \equiv I(r, E, \Omega, t) = E \cdot f(r, E, \Omega, t), \quad (1.46)$$

а количество переносимой энергии как

$$\Delta E = I(r, E, \Omega, t) \cdot \cos \Theta \cdot dE \cdot d\Omega \cdot ds \cdot dt, \quad (1.47)$$

где ds – дифференциал площади поверхности, через которую переносится энергия.

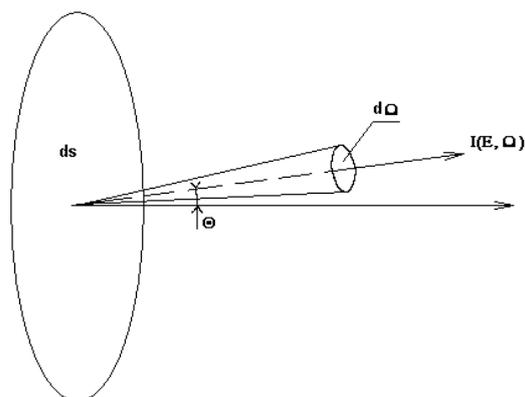


Рис. 1.5. Геометрическая интерпретация интенсивности I [155]

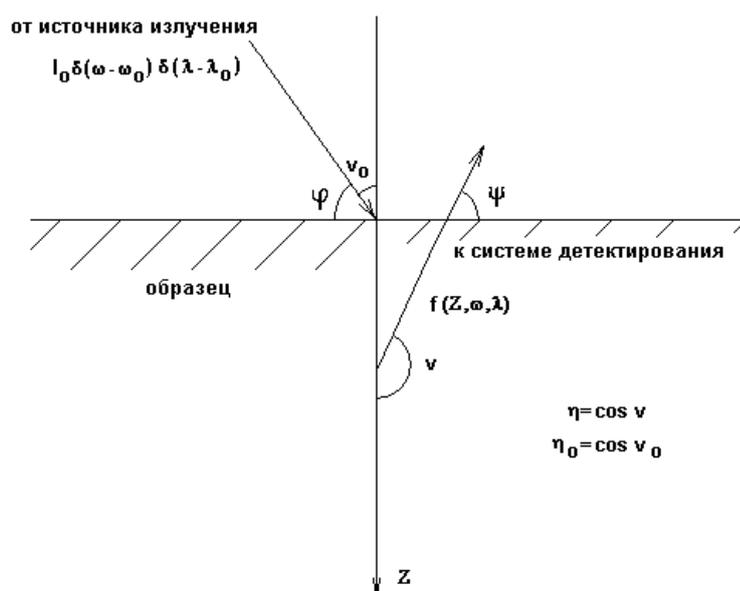


Рис. 1.6. Условия, применяемые обычно для описания радиационного переноса в рентгенофлуоресцентных спектрометрах [156].

Точное решение [155, 156] транспортного уравнения Больцмана надежно для всех видов взаимодействия и является очень простым, когда источник коллимирован, а первичный пучок излучения монохроматичен (рис. 1.6). В стандартных обозначениях при источнике с интенсивностью I_0 фотон в секунду получается следующее балансовое уравнение:

$$\eta \frac{\partial f(z, \omega, \lambda)}{\partial z} = -\mu(\lambda) \cdot f(z, \omega, \lambda) + \int d\lambda' \int_{4\pi} d\omega' [K(\omega, \lambda, \omega', \lambda') \cdot \aleph(z) \cdot f(z, \omega', \lambda') + I_0 \delta(z) \delta(\omega - \omega_0) \delta(\lambda - \lambda_0)], \quad (1.48)$$

где $\aleph(z)$ - функция Хэвисайда, функция $f(z, \omega, \lambda)$ задает число фотонов с длиной волны от λ до $\lambda + d\lambda$ и направлением от ω до $\omega + d\omega$, а ядро $K(\omega, \lambda, \omega', \lambda')$ задает плотность вероятности рассеяния (сечение взаимодействия) для каждого разрешенного процесса.

Уравнение (1.46) может быть решено с помощью серий неймановского ряда при известном ядре. В качестве решения имеем нулевую итерацию

$$f^{(0)}(z, \omega, \lambda) = \frac{I_0}{2|\eta|} \delta(\omega - \omega_0) \delta(\lambda - \lambda_0) \exp\left(-\frac{\mu|z|}{|\eta|}\right) (1 + \operatorname{sgn} \eta \cdot \operatorname{sgn} z) \quad (1.49)$$

и n -ю итерацию, зависящую от $(n-1)$ итерации:

$$f^{(n)}(z, \omega, \lambda) = \frac{1}{|\eta|} \left\{ \frac{1 + \operatorname{sgn} \eta}{2} \exp\left(-\frac{z\mu}{|\eta|}\right) * \int_0^z d\tau \cdot \exp\left(-\frac{\tau \cdot \mu}{|\eta|}\right) \int_0^\infty d\lambda' \int_{4\pi} d\omega' K(\omega, \lambda, \omega', \lambda') \cdot f^{(n-1)}(z, \omega', \lambda') + \frac{1 - \operatorname{sgn} \eta}{|\eta|} \int_0^\infty d\tau \cdot \exp\left(-\frac{\tau \cdot \mu}{|\eta|}\right) \int_0^\infty d\lambda' \int_{4\pi} d\omega' K(\omega, \lambda, \omega', \lambda') \cdot f^{(n-1)}(\tau + z, \omega', \lambda') \right\} \quad (1.50)$$

Подобные решения транспортного уравнения позволяют достаточно корректно получить решения для полубесконечного образца, однако имеют ограниченную применимость для анализа взаимодействий в случае сложной геометрии изучаемого образца или детектора, либо в случае ненасыщенных слоев.

1.4.2. Метод Монте-Карло.

Одним из методов, получившим широкое распространение в последнее время является метод Монте-Карло (метод моделирования частиц, метод статистического оценивания) [157].

Метод был предложен Метрополисом и Вильямом [158] в 1949 г. Метод зарекомендовал себя как реальный инструмент анализа при изучении ядерного оружия [159] с помощью цифрового компьютера ENIAC. Широко распространенными программами являются пакеты PENELOPE [160, 161], MCNP [162]. Решение транспортных уравнений методом Монте-Карло описано, например, в [163], применительно к детекторам, например, в [164].

С одной стороны, метод Монте-Карло является методом оценки определенных интегралов. С другой стороны, метод Монте-Карло предполагает некоторый вычислительный эксперимент, позволяющий оценить физическое явление. В работах [165, 166] ведется дискуссия о способах оптимизации расчетов при использовании метода Монте-Карло.

Моделирование спектров излучения образца, обусловленных многократными радиационными взаимодействиями методом Монте-Карло, рассмотрено, например, в работах [167...170]. В работе [171] также учитываются электронные взаимодействия в образце для анализа многослойных тонкопленочных покрытий на образцах. В некоторых случаях моделирование Монте-Карло используется для объяснения наблюдаемых эффектов, в том числе оценки глубины гетерогенности образца при рентгенофлуоресцентном анализе [172...175].

Обзор работ, посвященных моделированию функции отклика детектора, приведен ниже при рассмотрении процессов в детекторе.

Использование метода в электроннозондовом микроанализе описано в большом количестве работ, например [176...184].

Хотя метод Монте-Карло не может дать общего понимания рассматриваемой сложной проблемы [156], он дает хороший способ уточнения. Так, для тонких пленок в работах [185, 186], с учетом

поляризационных эффектов методом Монте-Карло было показано, что усиление сигнала от тонких покрытий может достигать 30% величины от неисправленной их интенсивности.

Метод коррекции наложений импульсов (multi-shape pulse pile-up correction) с помощью программы MCPPU рассмотрен в работе [187].

Также для некоторых случаев считается, что использование метода Монте-Карло более перспективно, чем численное решение транспортных уравнений Больцмана, поскольку позволяет учесть ряд геометрических факторов, которые в традиционном транспортном подходе с трудом поддаются учету.

1.5. Описание процессов взаимодействия излучения с веществом для спектрометра с традиционной геометрией.

Описание процессов радиационного переноса в терминах решения транспортных уравнений (1.48-1.50) в наиболее простых случаях является чересчур громоздким, и в рентгенофлуоресцентном анализе обычно пользуются более упрощенными частными подходами, особенно для описания однократных процессов.

Макроскопической геометрической моделью, представленной на рис. 1.6, принято пользоваться для расчета интенсивности флуоресценции.

Пусть пучок первичного излучения с энергией E_0 имеет интенсивность N_0 и падает на поверхность гомогенного полубесконечного образца под углом φ . При этом взаимодействие (фотопоглощение с флуоресценцией или рассеяние) излучения с веществом описывается ядром $K(E_0 \rightarrow E, \Theta)$, переводящим энергию первичного излучения E_0 в E после взаимодействия при угле рассеяния Θ (здесь формально распространяем термин «угол рассеяния» и на процесс фотопоглощения – флуоресценции, для единообразия математических формулировок).

Тогда интенсивность излучения, вышедшего под углом ϕ из образца, будет равна

$$\begin{aligned}
N &= \int_0^{\infty} N_0 \cdot e^{-\frac{\mu(E_0)\rho z}{\sin\varphi}} \cdot K(E_0 \rightarrow E, \Theta) \cdot e^{-\frac{\mu(E)\rho z}{\sin\psi}} \cdot d\rho z = \\
&= N_0 \frac{K(E_0 \rightarrow E, \Theta)}{\frac{\mu(E_0)}{\sin\varphi} + \frac{\mu(E)}{\sin\psi}}
\end{aligned} \tag{1.51}$$

В дальнейшем N_0 нормируется на 1.

Эта модель применима при описании процессов флуоресценции и рассеяния в условиях сильно пространственно ограниченных или коллимированных пучка первичного излучения и пучка излучения от образца к детектору, что является обычным случаем для процессов в рентгеновских спектрометрах с волновой дисперсией.

При описании однократных процессов в многокомпонентном образце следует пользоваться формулой

$$N_i = C_i \frac{K(E_0 \rightarrow E, \Theta)}{\frac{\mu(E_0)}{\sin\varphi} + \frac{\mu(E)}{\sin\psi}}. \tag{1.52}$$

Константа C_i в последнем выражении может быть также внесена в ядро K . Рассмотрим различные процессы однократного взаимодействия излучения с веществом образца в такой модели.

1.5.1. Фотопоглощение, флуоресценция.

Выражения для фотопоглощения и выхода флуоресценции в данной модели

$$K_{\tau}(E_0 \rightarrow E_j) = \tau_i(E_0) \cdot \omega_i \cdot p_{ij} \tag{1.53}$$

где E_0 – энергия первичного излучения, E_j – энергия j – ой характеристической линии i – ой серии. Интенсивность линии характеристического излучения, попавшей в детектор, будет равна

$$N(E_j) = C_i \frac{\tau_i(E_0) \cdot \omega_i \cdot p_{ij}}{\left(\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E_j)}{\sin(\phi)}\right)}, \tag{1.54}$$

В случае возбуждения полихроматичным первичным излучением со спектральным составом $\frac{dN_{source}}{d\lambda}$

$$N(E_j) = C_i \cdot \omega_i \cdot p_{ij} \int_{\lambda_0}^{\lambda_{qi}} \frac{dN_{source} \tau_i(E_0)}{\left(\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E_j)}{\sin(\phi)} \right)} d\lambda \quad (1.55)$$

1.5.2. Когерентное рассеяние.

В данной работе не будет затрагиваться часть когерентного рассеяния, связанного с возможной кристаллической структурой образца. Согласно выводам работы [101], применительно к условиям рентгенофлуоресцентного анализа с его типовой геометрией спектрометров, неопределенность интенсивности когерентного рассеяния, связанного с кристаллической решеткой пробы, не должна превышать несколько десятков процентов при узких пучках излучения и должна существенно уменьшаться с увеличением телесного угла.

Выражение для вероятности когерентного рассеяния

$$\frac{dK_{coh}(\Theta)}{d\Theta} = \frac{N_A}{A} \cdot \frac{d\sigma_e^T(\Theta)}{d\Omega} \cdot 2 \cdot \pi \cdot \sin(\Theta) \cdot F^2_{at_coh}, \quad (1.56)$$

Количество фотонов первичного излучения, когерентно рассеянных образцом и попавших в детектор для однокомпонентного образца равно

$$N_{coh} = \frac{\frac{d\sigma_{el_coh}}{d\Theta} \cdot F^2_{at_coh}}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E_0)}{\sin(\phi)}} \frac{N_A}{A} \quad (1.57)$$

и для многокомпонентного

$$N_{coh} = \frac{\frac{d\sigma_{el_coh}}{d\Theta} \cdot \sum_i C_i F^2_{at_coh_i}}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E_0)}{\sin(\phi)}} \frac{N_A}{A} \quad (1.58)$$

Необходимо, однако, отметить, что в ряде случаев, например, в рентгенофлуоресцентном микроанализе с использованием капиллярной оптики [188, 189], выявление пиков когерентного рассеяния позволяет идентифицировать некоторые металлы по параметрам поликристаллической решетки. Впрочем, особенности данного анализа не затрагиваются в данной работе.

1.5.3. Комptonовское рассеяние.

В первом приближении, с учетом формулы (1.39) вероятность некогерентного (комптоновского) рассеяния равна

$$\frac{dK_{comp}(E_0 \rightarrow E(\Theta))}{d\Theta} = 2 \cdot \pi \cdot \sin(\Theta) \frac{d\sigma_a^{incoh}}{d\Omega}, \quad (1.59)$$

при этом энергия рассеянного фотона равна

$$E(\Theta) = E_0 \frac{1}{1 + k(1 - \cos(\Theta))}, \quad (1.60)$$

$$k = \frac{h \cdot \nu_0}{m_e \cdot c^2} = \frac{E_0}{511.003}$$

В этом случае количество фотонов, рассеянных некогерентно однокомпонентным образцом и попавших в детектор, будет равно:

$$N_{comp}(E) = \frac{2 \cdot \pi \cdot \sin(\Theta) \frac{d\sigma_a^{incoh}(\Theta)}{d\Omega}}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E(\Theta))}{\sin(\phi)}} \frac{N_A}{A}. \quad (1.61)$$

Для многокомпонентного образца выражение будет иметь вид:

$$N_{comp}(E) = \frac{2 \cdot \pi \cdot \sin(\Theta) \sum_i C_i \frac{d\sigma_a^{incoh}(\Theta)}{d\Omega}}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E(\Theta))}{\sin(\phi)}} \frac{N_A}{A} \quad (1.62)$$

Данная модель неприемлема для расчетов в реальных условиях энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных спектрометров с широким диапазоном углов взаимодействия, поскольку энергия комптоновски рассеянного излучения существенно зависит от угла рассеяния Θ .

1.5.4. Полное внешнее отражение.

Полное внешнее отражение является следствием волновой природы рентгеновского излучения и рассмотрено, например, в работах [190, 78, 117, 191]. Действие рентгеновских зеркал основано на эффекте полного внешнего отражения рентгеновского излучения от почти гладкой поверхности. Показатель преломления n для рентгеновских лучей описывается комплексной функцией от амплитуд рассеяния

$$n = 1 - \delta - i\beta \quad (1.63)$$

Член δ для вещества, состоящего из разных атомов, определяется как

$$\delta = \frac{\lambda^2 \cdot r_e}{2 \cdot \pi} \sum_k (Z_k + f'_k) N_K, \quad (1.64)$$

где N_K число атомов в единице объема, а f' – действительная часть атомного фактора аномального рассеяния. Величина β учитывает поглощение рентгеновских лучей и дается выражением

$$\beta = \frac{\lambda \mu_l}{4\pi}, \quad (1.65)$$

в котором μ_l линейный коэффициент поглощения.

Если пренебречь поглощением, то критический угол Θ_c [рад] представляется в виде

$$\Theta_c = 0,00234 \cdot \lambda \sqrt{\rho \cdot Z / A} \quad (1.66)$$

Критические углы для рентгеновского излучения с энергией 10 кэВ для некоторых материалов [191] приведены в таблице 1.1.

Таблица 1.1 – Критические углы для рентгеновских лучей с энергией 10 кэВ.

Материал	Si	SiO ₂	Cu	Au	Pt
$\Theta_c, ^\circ$	0,1817	0,1812	0,3149	0,4407	0,4623
$\Theta_c, \text{мрад}$	3,17	3,16	5,50	7,69	8,07

Следует отметить, что критические углы полного внешнего отражения в рентгенофлуоресцентном анализе имеют тот же порядок, что и углы коллиматоров, использующихся в рентгенооптических схемах Соллера, поэтому возможно, что полное внешнее отражение играет важную роль при образовании фона в подобном канале.

В случае, когда отражающей поверхностью является многослойный кристалл, он начинает работать как широкополосный фильтр рентгеновского излучения [192, 193].

На идеально гладкую поверхность можно нанести тонкий слой анализируемого вещества и облучать подобный слой под углом, меньшим, чем критический, а флуоресценцию отбирать в направлении,

перпендикулярном поверхности. Подобный вид анализа называется анализом с полным внешним отражением (total reflection x-ray fluorescence – TXRF или grazing emission x-ray fluorescence - GEXRF). Анализ таких слоев возможен с использованием метода внутреннего стандарта. Теоретически подобный метод рассмотрен в работе [194]. При использовании синхротронного излучения для возбуждения флуоресценции при этом методе [195] пределы обнаружения составляют порядка 0,1 нг/мл в диапазоне $Z=18\dots35$.

Полное внешнее отражение нашло применение и в поликапиллярных линзах Кумахова [196]. Подобные линзы позволяют сфокусировать пучок излучения на площади диаметром до 50 - 100 мкм. Применение подобных линз при анализе с полным внешним отражением рассмотрено в работе [197].

Нас же в данном случае полное внешнее отражение интересует как один из механизмов, вероятно, обеспечивающих образование фона в каналах по Соллеру.

1.5.5. Двукратные процессы.

Рассмотрение двукратных процессов возможно как с помощью взятия многократных интегралов, так и с помощью решения транспортных уравнений. В общем случае оно является гораздо более сложным, чем рассмотрение однократных процессов, см., например [198].

Также следует отметить, что аналитическое решение транспортного уравнения с необходимой точностью не всегда возможно при реальных геометрических особенностях образца и детектора.

1.5.5.1. Избирательное возбуждение флуоресценцией других элементов.

Довозбуждение флуоресценции атомов элемента i в образце флуоресценцией элемента j происходит в случае, когда энергия линии j элемента больше энергии края поглощения рассматриваемой оболочки элемента i .

В таком случае интенсивность возбуждаемой линии будет равна $I_i = I_i^P + I_i^S$, где I_i^P описывается уравнением (1.39), а для нахождения вторичной флуоресценции необходимо вычислить [199]

$$I_{ij}^S = 0,5C_i w_{qi} C_j w_{qj} \mu_{ji} \Phi_j, \quad (1.67)$$

где

$$\Phi_j = \int_{\lambda_0}^{\lambda_{qj}} \frac{dN_{source} \tau_{\lambda_j} L_{\lambda} d\lambda}{\frac{\mu_{\lambda}}{\sin \varphi} + \frac{\mu_i}{\sin \psi}}, \quad (1.68)$$

$$L_{\lambda} = \frac{\sin \varphi}{\mu_{\lambda}} \ln \left(1 + \frac{\mu_{\lambda}}{\mu_j \sin \varphi} \right) + \frac{\sin \psi}{\mu_i} \ln \left(1 + \frac{\mu_i}{\mu_j \sin \psi} \right). \quad (1.69)$$

Транспортный подход (уравнения 1.49-1.50) также может быть применен для расчета довозбуждения флуоресценции. Флуоресценция твердого массивного образца изучена этим методом до четвертого порядка включительно [200, 201].

Выражение (1.68) может применяться в случае, когда образец является насыщенным. В случае рассмотрения флуоресценции в практически важном случае ненасыщенного образца – тонких пленках, выражение для описания интенсивности довозбуждения флуоресценции становится более сложным [202, 203].

Следует отметить, что детектор с точки зрения поглощения излучения является как раз тонким образцом.

1.5.5.2. Процессы двойного рассеяния и довозбуждения флуоресценции рассеянным излучением.

Оба типа рассеяния – когерентное и комптоновское также вносят вклад в интенсивность флуоресценции. Величина этого вклада зависит как от электронной конфигурации рассеивающих атомов, так и от степени поляризации фотонов [156].

Техника равновесного излучательного переноса большей частью используется для изучения перемещения частиц, включая перемещения фотонов [204,155]. Также она может быть применена к расчету величин многократного рассеяния фотонов, проникающих в бесконечно толстый однородный образец. В этом случае транспортное уравнение обычно [205, 206] решается с помощью серий неймановского ряда – уравнения (1.49-1.50). Качество такого решения делает его адекватным для описания смешанных взаимодействий.

Иллюстрация вычислений с помощью интегральных транспортных уравнений дана в работе [207]. Однако, для иллюстрации рассеяния поляризованного излучения тот же автор все таки использует метод Монте-Карло [208].

Необходимо отметить, что для легких матриц вклады двойных взаимодействий (рассеяние – фотопоглощение - флуоресценция) в интенсивность флуоресценции могут достигать нескольких десятков процентов, см., например [209, 156].

Проверка расчетов эффекта комптоновского рассеяния флуоресцентного излучения по теории [205] для области энергий 15-28 кэВ была проведена в работе [210]. Форма экспериментально наблюдаемой линии (флуоресценция – комптоновское рассеяние) может быть описана [211] с точностью порядка $\pm 40\%$ для рассеяния К-линий Ru и $\pm 15\%$ для рассеяния К-линий Cd. Интегральная точность расчета площади линии лучше и составляет величину порядка 15 %. Следует отметить, что рассчитанная форма подобной линии зависит от используемой модели дифференциального сечения комптоновского рассеяния. Вполне вероятно, что дифференциальные сечения

комптоновского рассеяния на сегодняшний день содержат неточности порядка 40%.

В работе [212] решалась обратная задача по измерению спектральных линий при использовании источника ^{109}Cd для возбуждения флуоресценции и газонаполненного счетчика для регистрации. Из текста работы видно, что процесс комптоновского рассеяния в детекторе с образованием горба потерь не учтен, хотя фон от регистрации линии излучения 88 кэВ каким то образом аппроксимировался и в область ниже 18 кэВ, что в работе связывается с многократным рассеянием линии с энергией 22 кэВ.

Необходимо отметить, что решение транспортных уравнений удобно лишь для полубесконечной среды, которой, например, является насыщенный образец. В рамках «ненасыщенного образца» с ограниченными размерами, которым в некотором смысле является детектор при больших энергиях излучения, требуются другие подходы.

Моделирование процессов многократного рассеяния с помощью метода Монте-Карло рассмотрено, например, в работах [213]. Учет многократного комптоновского рассеяния в значимой области высоких энергий позволяет при описании фона получить ошибку около 30%.

Поскольку данная работа ставит перед собой цель оценить в первом приближении вклады всех процессов в формирование фона, не будем браться за анализ многократных взаимодействий в образце с помощью решения транспортных уравнений в неколлимированной модели, описывающей реальный спектрометр, хотя это приведет к неточностям в результатах расчетов в областях спектра, где в образце преобладает двойное комптоновское рассеяние.

1.5.5.3. Возбуждение флуоресцентного излучения фото и Оже электронами.

При использовании рентгеновских трубок с заземленным анодом и толщиной бериллиевого окна порядка 0,2 – 0,3 мм рентгеновская флуоресценция элементов с малыми Z (кислород, азот, углерод, бор) оказывается в существенной мере обусловленной ионизацией атомов

фото- и Оже электронами, возникающими в облучаемом материале [198, 214, 215]. Длина пробега электрона считается много меньшей, чем длина пробега фотона, в этом случае процесс может рассматриваться как однократный, т.е. происходящий в одной и той же точке.

Вероятность $K_i(\lambda)$ преобразования первичного фотона во флуоресцентный для излучения элементов с малыми атомными номерами должна учитывать вероятность фотоионизации K_{i1} , эффекта довозбуждения K_{i2} , а также ионизацию атомов фото- K_{if} и Оже K_{iO} электронами, возникающими в облучаемом материале:

$$K_i(\lambda) = K_{i1}(\lambda) + K_{i2}(\lambda) + K_{if}(\lambda) + K_{iO}(\lambda) \quad (1.70)$$

Для расчета непосредственной фотоионизации используется выражение (1.39), для эффекта избирательного возбуждения (1.46), для довозбуждения фотоэлектронами

$$K_{if}(\lambda) = \omega_{qi} P_{qk} \sum_{j,m} [\tau_{mj}(\lambda) c_j n_{mj}(c_i, E)] \quad (1.71)$$

где $n_{mj}(c_i, E)$ – вероятность ионизации атомов элемента i фотоэлектроном m оболочки элемента j . Суммирование в (1.50) ведется по всем m оболочкам всех j элементов, фотоэлектроны которых способны ионизировать q оболочку атомов i .

Вероятность довозбуждения Оже электронами равна:

$$K_{iO} = \omega_{qi} P_{qk} \sum_j c_j \tau_{Kj}(\lambda) (1 - \omega_{Kj}) [0.7 n_{Kj}(c_i, E_{KL_2L_3}) + 0.3 n_{Kj}(c_i, E_{KL_2M_3})] \quad (1.72)$$

Суммирование ведется по всем элементам j , энергия Оже электроны которых достаточна для ионизации q оболочки элемента i . При этом учтены Оже электроны только К оболочки элементов j .

Рассмотренные теоретические зависимости использованы для выполнения расчетов интенсивности флуоресценции элементов с малыми Z .

Из результатов расчетов [214, 215] следует, что уменьшение толщины бериллиевого окна от 300 мкм до 75 мкм и использование трубки с заземленным катодом вместо трубки с заземленным анодом увеличивает интенсивность рентгеновской флуоресценции элементов с малыми Z в 3 – 4 раза. Вклад фото и Оже электронов при использовании современных трубок может достигать 80% при возбуждении углерода в

железной и кремниевой матрицах. Особенности эксперимента по подтверждению эффектов довозбуждения фото и Оже электронами рассмотрены в главе 5.

1.6. Параметры кристаллов-анализаторов (монохроматоров) рентгенофлуоресцентных спектрометров.

Наряду с процессами отражения исследуемого излучения по закону Вульфа – Бреггов [126, 127] – в спектрометрах с волновой дисперсией возможно попадание в детектор флуоресцентного излучения кристалла – анализатора и излучения, рассеянного на деталях аппаратуры, в первую очередь - коллиматорах. Также наряду с естественной шириной линии важными факторами, ограничивающими «добротность» канала являются собственная ширина пика отражения на идеальном кристалле и ширина пика, обусловленная мозаичностью кристалла.

1.6.1. Характеристики кристаллов

Основой любой рентгенооптической системы с волновой дисперсией являются кристаллы-анализаторы. Характеристики наиболее часто применяемых кристаллов-анализаторов приведены, например, в работах [1, 4, 216...219].

Для анализа легких элементов (В-F) в настоящее время широко используются многослойные псевдокристаллы (multilayer). Процессы «отражения» псевдокристаллами рассмотрены, например, в работах [193, 220]. Исследование свойств Mo/Si псевдокристалла с толщиной Si слоя 2 нм и толщиной Mo слоя 1,2,3,4 нм приведено в работе [221]. Описание процесса производства подобного псевдокристалла методами литографии и описание свойств полученного кристалла приведено в работе [222]. В области мягкого рентгеновского излучения (до 300 эВ) коммерчески доступные многослойные кристаллы на основе Mo и W с энергетическим разрешением $\Delta E/E=1/50$ способны давать информацию, достаточную для измерения сдвигов линий из-за химических связей [223].

Обычно рассматривается узкий, параллельный пучок монохроматического рентгеновского излучения, падающего на реальный кристалл под некоторым углом Θ . Полуширина кривой отражения ω характеризует угловой диапазон, в пределах которого расположено отраженное монохроматическое излучение с длиной волны λ . Величина этого угла изменяется в широких пределах – от нескольких угловых секунд для наиболее совершенных кристаллов до нескольких угловых минут для большинства кристаллов, используемых в РФА, и до единиц градусов при использовании многослойных зеркал в мягкой области рентгеновского спектра [216]. Обычно кривая отражения имеет почти гауссову форму, вид и параметры ее характеризуют степень несовершенства конкретного кристалла или зеркала. Отношение числа отраженных под углом Брегга фотонов к числу падающих фотонов изменяется от 6% (топаз) до примерно 50% (LiF).

Также, для кристаллов-анализаторов, используемых в рентгенофлуоресцентном анализе, ширина дифракционного максимума определяется мозаичностью кристалла. В экспериментах Мозли и Дарвина в 1913 году было обнаружено почти десятикратное расхождение между экспериментальными и теоретическими интенсивностями отражений. В работах [224, 225] Ч.Г.Дарвин предложил модель мозаичного кристалла, в которой кристалл представляется состоящим из блоков мозаики, имеющих структуру совершенного кристалла, но разориентированы на некоторый угол. Для кристалла кварца мозаичность составляет $0,017^\circ$, для LiF – около $0,11^\circ$ [216]. Кроме того, ширина аппаратного дифракционного максимума зависит от геометрических условий и рентгенооптической схемы фокусировки. Блоки мозаики являются на самом деле лишь математической моделью, аппроксимирующей искажение структуры кристалла дефектами кристаллической решетки [226]. Позднее была разработана теория динамической дифракции рентгеновских лучей в кристаллах [227, 228] учитывающая длину когерентности излучения и поглощение в кристалле, при этом форма линии отличается от гауссовой.

Некоторые тонкие эффекты, связанные с конструкцией кристалла и аппаратурной формой линии рассматриваются в работе [229].

Следует, заметить, что угловая ширина на полувысоте для хороших кристаллов остается много меньшей, чем ширина, необходимая для захвата всей линии излучения [94].

1.6.2. Рентгенооптические схемы.

В работе [230] однокристалльные рентгенооптические схемы классифицированы на рентгенооптические схемы с плоским кристаллом (Брэггов [126] и Соллера [231]), методы вертикальной фокусировки (Гамоша [232] и Кунцеля [233]), методы горизонтальной фокусировки (Иоганна [234], Иоганссона [235], Кошуа [236] и Дю-Монда [237]).

В работе будут рассматриваться применяемые в современных спектрометрах рентгенооптические схемы по Соллеру и Иоганссону, которые чаще других используются на современных спектрометрах.

В схеме Соллера (рис. 1.7) между образцом и кристаллом помещается коллиматор, для отбора из потока излучения параллельного пучка лучей.



Рис. 1.7. Рентгенооптическая схема по Соллеру.

В схеме Иоганссона (рис. 1.8) используется предварительно вышлифованный и изогнутый кристалл. Фокусировка выполняется с помощью входной и выходной щелей, находящихся на фокальной окружности.

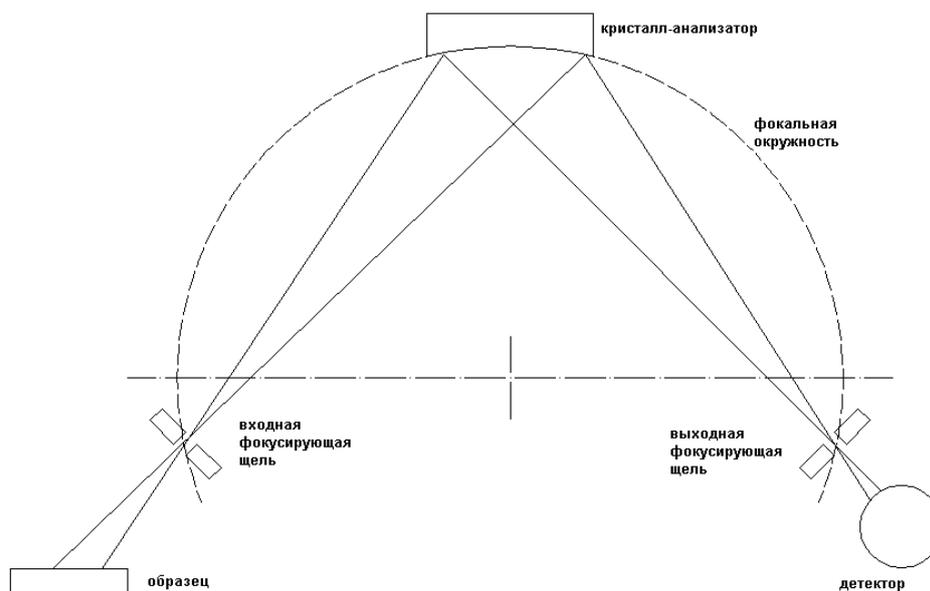


Рис. 1.8. Рентгенооптическая схема по Иоганссону.

Увеличить светосилу монохроматора можно используя монохроматор со ступенчатой поверхностью [238], в котором используются 4 цилиндрически изогнутых кристалла. В настоящее время рассматриваются в том числе кристаллы, изогнутые по двум направлениям [239].

Угловая апертура коллиматоров по Соллеру обычно составляет доли градусов, что соизмеримо с углами полного внешнего отражения. Поэтому следует сделать предположение о том, что процесс полного внешнего отражения должен существенно влиять на фоновую составляющую в этом канале.

1.6.3. Модели фона.

В книге [216] обобщаются результаты ряда работ по изучению состава фона [240 - 247] и приводится формула для оценки интенсивности фона в спектрометрах с волновой дисперсией:

$$I_{\phi} = I_{p\lambda_1} + I_{p\lambda_2} + I_g^n + I_g^{\phi l} + I_n^{\phi l} + I_{\phi n}^{\phi l} + I_{\phi} + I_c, \quad (1.73)$$

где $I_{p\lambda_1}$ и $I_{p\lambda_2}$ - составляющие интенсивности фона, обусловленные брэгговским отражением рассеянного образцом тормозного излучения рентгеновской трубки соответственно в первом и во втором порядках;

I_g^n и $I_g^{\phi l}$ - составляющие, обусловленные диффузным рассеянием на кристалл-анализаторе соответственно первичного и флуоресцентного излучений;

$I_n^{\phi l}$ и $I_{\phi n}^{\phi l}$ - составляющие, обусловленные флуоресцентным излучением атомов кристалла, возбуждаемых соответственно рассеянным на образце первичным и флуоресцентным излучением образца;

I_{ϕ} - составляющая, обусловленная тормозным излучением фото и Оже электронов образца;

I_c - составляющая, характеризующая вклад излучения, рассеянного на деталях спектрометра.

Случай образования фона для способа фокусировки по Соллеру описан, например, в работах [244 - 246]. В работе [244], на основе экспериментов, проведенных на спектрометре VRA-20, делается вывод о том, что фон в окрестности линии Si (1.4 кэВ) обусловлен жестким рассеянным и флуоресцентным излучением пробы и деталей спектрометра. Для канала по Соллеру, на примере пробы титана, делается вывод о том, что излучение титана так или иначе попадает в детектор при любом положении кристалла. Это позволяет авторам сделать вывод о том, что в детектор будет попадать диффузно рассеянное излучение всех элементов пробы и частей спектрометра.

В работах [242, 244] при анализе фона предлагается использовать выражение

$$I_{\phi} = \alpha I_{\text{pac}}^{\lambda=1A} + \sum_i \beta_i I_i. \quad (1.74)$$

В коротковолновой области установлено, что фон в основном определяется рассеянным излучением рентгеновской трубки. В работах [241, 247] для описания фона, обусловленного отраженным излучением, предлагается выражение

$$I_{p\lambda l} = \text{const} \cdot I_{\lambda} \cdot \sigma^0 / \mu_{\lambda}^0, \quad (1.75)$$

где I_{λ} - интенсивность излучения, падающего на образец, σ_0 и μ_{λ}^0 – массовые коэффициенты рассеяния и ослабления излучения с длиной волны λ . Похожие результаты были получены также в работе [248] для вакуумного спектрометра Rigaku 3070.

Подобные модели формирования фона широко используются для его анализа при использовании рентгенооптической схемы по Соллеру и показывают хорошее согласие с экспериментом (с неопределенностью фона около 15% его значения) в области энергий флуоресцентного излучения больших 5 кэВ.

Модели, аналогичные формуле (1.75), можно использовать для того, чтобы частично учесть влияние поглощения вблизи измеряемой линии по фону, обусловленному рассеянием первичного излучения образцом. Подобный метод называется методом стандарта-фона (mode of standard background) [249...254] и в работе [245] отнесен к методам внутреннего стандарта. Основным ограничением подобного подхода является необходимость доказательства того, что фон вблизи спектральной линии обусловлен только первым порядком отражения от рассеянного образцом тормозного излучения рентгеновской трубки. В случае большей значимости других компонентов фона данный способ коррекции измеренных результатов является неприемлемым.

Следует, однако, отметить, что термин « $I_g^{\phi\lambda}$ - составляющая фона, обусловленная диффузным рассеянием флуоресцентного излучения образца кристалл – анализатором» и ассоциируемая с коэффициентами β в уравнении (1.73) на самом деле рассматривается как «составляющая фона, обусловленная прохождением флуоресцентного излучения образца через спектрометрический канал». Таким образом, в эту составляющую

должна входить как составляющая, обусловленная непосредственно диффузным рассеянием на кристалле, так и составляющая, обусловленная рассеянием на деталях спектрометрического канала.

Например, в работе [255] анализируются различные корреляционные модели для спектрометра S4 Pioneer Bruker, но в то же время не приводится информация о типе спектрального канала, используемых коллиматорах (если канал по Соллеру), установленных порогах амплитудного дискриминатора или алгоритмах их установки.

Формирование фона в схемах с фокусировкой по Иоганну и Иоганссону отличается от формирования фона в схеме фокусировки по Соллеру, что отмечается в работах [256, 257] и, естественно, определяет разную значимость составляющих в уравнении (1.73).

Факторы, формирующие фон, наиболее изучены для схемы Соллера, широко используемой во всеволновых спектрометрах с перестраиваемой геометрией. Наиболее значимыми оказываются вклады в фон первого порядка брегговского отражения тормозного излучения рентгеновской трубки, рассеянного на образце, и диффузное рассеяние кристалл-анализатором флуоресцентного излучения образца. Правильный выбор кристалла – анализатора позволяет устранить составляющую фона, обусловленную флуоресценцией кристалла, и для схемы Соллера уравнение (1.73) интенсивности фонового излучения можно представить в виде:

$$I_{\phi} \approx I_{p\lambda_1} + I_g^n + I_g^{\phi n} \quad (1.76)$$

Фокусировка по Иоганссону широко используется в фиксированных спектрометрических каналах, где отсутствует возможность измерения фона рядом с линией. Для таких каналов структура фонового излучения менее изучена. Известно [256], что в этом случае роль диффузного рассеяния на кристалле в формировании фона оказывается существенно меньше. Это объясняется малой площадью входной и выходной щели фокусирующих систем. Отмечается также [257] гораздо меньшая зависимость интенсивности фона от химического состава образца по сравнению со схемой Соллера.

Для многоканальной аппаратуры влияние элементного состава образца на величину фона учитывается построением полуэмпирических зависимостей этих величин от интенсивности линий отдельных элементов (например [247]). При этом предполагается, что рентгенооптическая схема выделения аналитической линии не влияет на вид градуируемой зависимости.

Следует отметить, что модель для расчета фона, обусловленного тормозным излучением фото и Оже электронов, описанная в работе [258], имеет только частичное подтверждение, из-за более существенного влияния других процессов, приводящих к фонообразованию. Также необходимо отметить недостаточную изученность процессов, приводящих к формированию фона и в энергодисперсионных спектрометрах.

1.7. Процессы в детекторе

1.7.1. Общие характеристики детекторов.

В основе регистрации рентгеновского и гамма излучения [259] лежат процессы фотопоглощения, комптоновского рассеяния и образования электронно-позитронных пар (последний – для низкоэнергетического гамма излучения с энергией более 1,022 МэВ, см. также рис. 1.4).

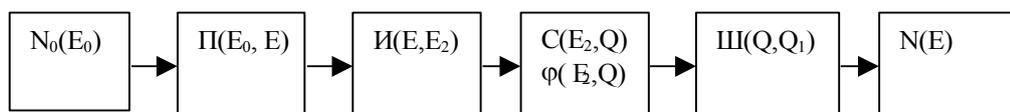


Рис. 1.9. Схема формирования амплитудного спектра в детекторе, принятая в работе [260]. $N_0(E_0)$ - начальный спектр излучения, $P(E_0, E)$ – спектр излучения, поглощенный веществом детектора, $I(E, E_2)$ - размытие линии за счет статистического характера ионизации, $C(E_2, Q)$ - флуктуации заряда, образовавшегося в детекторе, $\phi(E_2, Q)$ - флуктуации потерь заряда, $S(Q, Q_1)$ – шумы предусилителя, $N(E)$ - результирующий спектр.

В рамках данной работы будут рассматриваться только детекторы, в которых имеется возможность регистрировать амплитуду импульса – а, следовательно, оценивать энергию попавшей в детектор частицы или фотона. Для подобных газовых детекторов обычно используется термин «пропорциональный счетчик», для полупроводникового детектора – «энергодисперсионный».

Для описания измеряемого сигнала и фона в энергодисперсионном флуоресцентном анализе и других областях рентгеновской и гамма спектрометрии необходимо знание функции отклика детектора, которая представляет собой вероятность регистрации фотона с энергией E_0 как фотона с энергией E .

Процесс формирования амплитудного спектра импульсов напряжения (тока) в детекторе рентгеновского излучения можно представить в виде схемы, приведенной на рис. 1.9 [260].

После фотопоглощения или комптоновского рассеяния в детекторе обычно возникает электрон с высокой энергией (фотоэлектрон или комптоновский), а также могут возникнуть один или несколько фотонов (флуоресцентный один или несколько фотонов, после каскадных переходов, комптоновски рассеянный фотон). В дальнейшем в детекторе анализируются появившиеся электроны, а о появившихся фотонах при анализе процессов, происходящих в детекторе, достаточно часто забывают.

При прохождении через вещество [259] заряженные частицы (в т.ч. электроны высокой энергии) теряют энергию, передавая ее электронам атомов поглотителя. Кинетическая энергия большинства выбитых электронов меньше потенциала ионизации, однако некоторые электроны обладают большими энергиями вплоть до максимальной, вытекающей из классической механики $W_{max} = E_p * 4mM / (m+M)^2$. Эти электроны с большой энергией часто называют δ -лучами. Такие электроны могут сами вызывать дальнейшую ионизацию. Полная ионизация равна сумме первичной и вторичной ионизации, создаваемой δ -лучами. При прохождении через водород электронов с энергией 1 МэВ вследствие

вторичной ионизации образуется почти в 2 раза больше электронов, чем вследствие первичной [261].

Важным параметром для вещества детекторов является средняя энергия ω , расходуемая на образование одной пары ионов [262...264]. Значение ω для данного газа почти не зависит от энергии и типа частиц и для различных газов отличается менее, чем в 2 раза. Качественно это объясняется [265] тем, что вероятность образования δ -электронов, кинетическая энергия которых много больше потенциала ионизации, мала.

В твердых телах электроны находятся не на уровнях, характерных для отдельных электронов, а в зонах, состоящих из большого числа близко расположенных уровней. При ионизации электроны занимают свободные уровни в более высокой зоне, после чего энергия перераспределяется и электроны с высокой энергией вызывают дальнейшую ионизацию.

При рассмотрении зависимости ω от энергии и типа ионизирующих частиц важно иметь в виду случаи, когда эта зависимость существует и связана с рекомбинацией. В большинстве экспериментов с гамма лучами, электронами, протонами, альфа-частицами существенной разницы в параметрах ω не обнаружено [259]. Однако в случае осколков деления плотность ионизации становится настолько большой, что эффективность собирания электронов уменьшается, что приводит к увеличению ω .

Так как энергию заряженной частицы определяют по ионизации, которую эта частица создает, флуктуация числа пар ионов влияет на точность измерений. Если предположить, что акты ионизации происходят независимо друг от друга и число пар образующихся ионов n велико, то статистическая флуктуация оказывается равной \sqrt{n} . Однако Фано [265] показал, что все акты ионизации нельзя считать совершенно независимыми, а это предположение приводит к завышению среднеквадратической флуктуации. Коэффициент F , равный отношению среднеквадратической флуктуации к n называют коэффициентом Фано. Более точный анализ должен учитывать распределение потерь энергии

частицы между ионизирующими и неионизирующими столкновениями. Если обозначить вероятность столкновения p_i , приводящего к ионизации, то коэффициент Фано обычно меньше $1-p_i$. В работе [266] предсказание Фано было подтверждено для аргона.

Если анализировать флуктуации потерь энергии на коротком участке трека, то они являются значительно большими, чем для только что рассмотренного случая полного поглощения, что связано с тем, что значительная часть энергии может быть передана δ -электрону. Флуктуации небольшого числа таких столкновений будут заметно влиять на распределение потерь энергии в тонких поглотителях, что было рассмотрено Бором [267], Ландау [268], Блунком и Лейзегангом [269].

Таблица 1.2 – Основные типы детекторов.

Детектор	Энергетический диапазон, кэВ	$\Delta E/E$ при 5,9 кэВ, %	Мертвое время на событие, мкс	Максимальная скорость счета, c^{-1}
Газонаполненная ионизационная камера (в токовом режиме)	0,2-250	-	-	10^{11}
Газонаполненный пропорциональный счетчик	0,2 – 50	15	0,2	10^6
Многопроволочные и микростриповые пропорциональные детекторы	3 – 50	20	0,2	$10^6/\text{мм}^2$
Сцинтилляционный детектор (NaI(Tl))	$3 - 10^6$	40	0,5 – 30	$2 \cdot 10^5$
Поверхностно-барьерный полупроводниковый детектор (в токовом режиме)	0,1 – 20	-	-	10^8
Лавинные фотодиоды	0,1 – 50	20	0,001	10^8
ПЗС – детекторы	0,1 - 70			
Сверхпроводящие детекторы	0,1 – 4	0,5	100	$5 \cdot 10^3$
Пластины с оптической памятью	4 – 80			

Свойства наиболее распространенных промышленно производимых детекторов согласно работе [218] приведены в таблице 1.2.

Обзор свойств детекторов, предназначенных для рентгеноструктурного анализа, приведен, например, в работе [270].

В ряде случаев (например, при изменении атмосферного давления для незапаянных газовых детекторов) низкочастотный дрейф параметров детектора и системы регистрации в некоторых случаях может изменять интенсивность регистрируемого сигнала. В этом случае флуктуации сигнала аппаратуры могут расцениваться как дополнительный вид фона.

1.7.2. Газоразрядные пропорциональные детекторы.

Этот тип детекторов наиболее распространен в современной аппаратуре и наиболее часто применяется в диапазоне энергий от сотен эВ до 10 кэВ.

Конструктивно [271] пропорциональные счетчики представляют собой газоразрядный двухэлектродный прибор. Катодом является корпус счетчика, анодом - тонкая металлическая нить, натянутая вдоль оси корпуса. Корпус детектора заполняется газом. Чаще всего используют инертные газы: аргон, неон, ксенон. Фотон рентгеновского излучения взаимодействует с газом детектора. Приблизительно через 10^{-7} сек после процесса взаимодействия энергия ионов и электронов уменьшается из-за столкновений до значений ниже 10 эВ. В результате рассмотренных выше процессов в газе образуется n_0 пар ионов, $n_0 = E/J$, где J - средняя энергия образования пары ионов.

Молекулы некоторых электроотрицательных газов (кислорода, галогенов, паров воды) легко захватывают электроны, образуя электроотрицательные ионы (вероятность захвата электрона при столкновении порядка 10^{-3}). Этот эффект не наблюдается в инертных газах, азоте, водороде и метане.

При дрейфе электронов они могут сталкиваться с положительными ионами и рекомбинировать с ними. Скорость рекомбинации пропорциональна концентрации носителей зарядов обоих знаков.

Избыточная энергия, освобождаемая при рекомбинации, может выделяться в виде излучения или теряться при столкновениях. Ионы образуются не равномерно во всем объеме, а располагаются первоначально вдоль трека частицы, где скорость рекомбинации значительно выше (так называемая рекомбинация в колонках [272]). Такая рекомбинация может происходить интенсивно, пока из-за диффузии и дрейфа во внешнем электрическом поле облака ионов и электронов не разойдутся на достаточно большое расстояние. Это явление приводит к тому, что средняя энергия, расходуемая на образование пары ионов, зависит от давления. Моделирование потерь на рекомбинацию методом Монте-Карло при регистрации тяжелых частиц выполнено в работе [273].

Подвижности электронов и ионов в газе отличаются примерно на 3 порядка, поэтому для получения счетчика с высоким временным разрешением обычно основное внимание уделяется сбору электронов. Частично проблема решается в цилиндрических счетчиках (ионизационных камерах), в которых анодом служит тонкая проволока, расположенная вдоль оси цилиндра.

В окрестности нити электроны ускоряются электрическим полем и в свою очередь ионизируют атомы газа. Нити достигает число электронов $n \gg n_0$. Коэффициент газового усиления счетчика n/n_0 составляет обычно величину порядка $10^3 - 10^5$. Все электроны собираются на аноде за несколько сотен наносекунд, а положительные ионы на катоде – за несколько сотен микросекунд. Образованный ионами пространственный заряд уменьшает интенсивность поля вблизи анода и снижает коэффициент усиления для следующего акта ионизации, что приводит к сдвигу энергетического пика [274]. В работе [271] показывается, что для уменьшения сдвига линии от нагрузки следует работать при низких коэффициентах газового усиления.

Образование послеимпульса (который может быть причиной дополнительного фона) в результате фотовспышки на катоде (когда положительные ионы достигают катода) и его подавление с помощью выбора гасящих добавок и материала катода рассмотрено в работах [275,

276]. Дрейф параметров проточных газовых детекторов и их зависимость от внешних условий обсужден в работах [20, 277]. Долговечность пропорционального счетчика ограничена «старением», которое возникает из-за осаждения и полимеризации органических соединений на поверхности анодной проволоки [278], и заметно после попадания 10^{16} электронов на 1 мм длины проволоки. В некоторых промышленных детекторах предусмотрен механизм перемотки проволоки, в остальных случаях ее обычно чистят с использованием эфиров, растворяющих полимеры. В работах [279, 280] считается, что деградация характеристик промышленных пропорциональных счетчиков происходит также из-за отравления рабочего газа выделениями клея, герметизирующего входное бериллиевое окно и предложен пропорциональный счетчик изготовленный из кварцевого стекла толщиной 1 мм. Очевидно, что подобное входное окно вместо бериллия значительно сильнее поглощает низкоэнергетическое излучение.

1.7.3. Сцинтилляционный детектор.

В сцинтилляционном детекторе вспышки света (сцинтилляции), испускаемые атомами, преобразуются в электрический сигнал, который затем усиливается [259, 281, 282]. Рентгеновские фотоны регистрируются в сцинтилляторе по вторичным заряженным частицам – электронам, образующимся в результате фотоэлектрического поглощения или комптоновского взаимодействия с веществом сцинтиллятора.

Необходимо различать два вида люминесценции фосфоров: электроны, перешедшие в возбужденное состояние, могут вернуться в основное энергетическое состояние либо путем прямого перехода (флуоресценция), либо через промежуточное состояние (фосфоресценция). Флуоресценция протекает очень быстро, в то время как скорость и интенсивность фосфоресценции зависит от температуры.

Считается, что при высвечивании флуоресценции как в случае органических, так и неорганических сцинтилляторов большую роль играют экситоны, образующиеся в сцинтилляторе при прохождении

заряженной частицы [283]. Экситоны (коллективные колебания, передаваемые от молекулы к молекуле в органическом сцинтилляторе или по кристаллической решетке в неорганическом) движутся до тех пор, пока не столкнутся с атомами примеси с высокой вероятностью возбуждения и последующей флуоресценцией.

Зависимость светового выхода от энергии гамма квантов в сцинтилляторах слегка нелинейна, например, в работах [284, 285] указывается, что в диапазоне энергий от 0 до 1 МэВ в кристаллах NaI(Tl) световой выход, отнесенный к единице энергии, изменяется не меньше чем на 20%. Гораздо более сильно световой выход на единицу энергии зависит от типа излучения. Более низкая конверсионная способность при возбуждении тяжелыми частицами объясняется возрастанием числа безрадиационных переходов, которые происходят с уровней, легко возбуждающимися низкоэнергетическими электронами, возникающими при прохождении тяжелых заряженных частиц [286].

По всей видимости, термин «световыход» к кристаллам целесообразно применять в случае, если соответствующий детектор на его основе применяется в токовом режиме. В счетном же режиме более целесообразно применять термины «эффективность» или «вероятность регистрации фотона в пике полного поглощения». При этом надо понимать, что соответствующие вероятности, а, следовательно, и световыход очень сильно зависят от геометрических параметров используемого кристалла.

Как правило, в органических сцинтилляторах флуоресценция проходит очень быстро, например, [287] в антрацене – за $3,5 \cdot 10^{-9}$ с, в неорганических это время обычно гораздо больше. Также обнаружено, что кроме быстро затухающей флуоресценции, имеется «хвост» порядка 10^{-6} с. Соотношение между количеством света в основном импульсе флуоресценции и в «хвосте» сильно зависит от рода частиц, что позволяет использовать данное соотношение для дискриминации импульсов по их форме, например [288...292]. В работе [293] выдвинута гипотеза, согласно которой медленное затухание флуоресцентного излучения обусловлено парами экситонов, а интенсивность излучения,

соответствующая данному хвосту, квадратично зависит от времени жизни экситона.

Амплитудное разрешение сцинтилляционного детектора определяется флуктуациями числа фотонов, достигших ФЭУ, и флуктуациями числа фотоэлектронов, попадающих на первый диод умножителя.

Эффективность собирания света от световой вспышки на фотокатод ФЭУ зависит от геометрических размеров и формы сцинтиллятора, вида отражателя и прозрачности материала сцинтиллятора для собственного излучения [282]. В кристаллах NaI(Tl) или CsI(Tl), изготавливаемых в форме параллелепипеда с полированными гранями, удается собрать на фотокатод ФЭУ 55-65% общей интенсивности световой вспышки.

Для регистрации рентгеновского излучения обычно используют сцинтилляционные счетчики на основе малошумящих умножителей и сцинтилляторов с высоким энергетическим выходом (NaI(Tl), CsI(Tl), CaI₂(Eu) и т.п.). Детектор с кристаллом из германата висмута рассмотрен в работе [294].

Рентгеновские фотоны с энергией от 10 до 100 кэВ регистрируются сцинтилляционными счетчиками с эффективностью, близкой к 100%. Но в области от 1 до 10 кэВ начинают сказываться шумы фотоумножителя, и эффективность регистрации резко падает.

Исследования шумов, обусловленных естественной радиоактивностью стекла ФЭУ и самого кристалла сцинтиллятора, представлены в работах [295, 296]. Исследования свойств новых сцинтилляторов, в том числе на пластмассовой основе, рассмотрены в работах [297...301]. Следует отметить, что в указанных работах не рассматриваются вопросы генерации шума (либо шумоподобного сигнала) во всем диапазоне регистрируемых энергий с точки зрения анализа процессов поглощения энергии первичного излучения сцинтиллятором. Коррекция пика фото потерь для NaI сцинтиллятора приведена в работе [302].

Для кристалла NaI(Tl) форма кривой регистрируемого импульса (в основном задней экспоненциально спадающей части) существенно изменяется в диапазоне температур от минус 60 до + 60 град. С [303].

Обзор развития пропорциональных газовых-сцинтилляционных счетчиков (gas proportional scintillation counters), в которых излучение сначала проходит сквозь газовый детектор, а затем регистрируется в сцинтилляционном счетчике, приведен в работе [304]. Однако, в таких счетчиках не используются схемы антисовпадений для определения одновременных событий и, соответственно, нет возможности выделять события, приводящие к регистрации фотона в пике потерь.

1.7.4. Полупроводниковый детектор.

Одной из первых обзорных работ по полупроводниковым детекторам была работа Дж. Дирнли и Д. Нортропа [259]. Полупроводниковые детекторы [305] представляют собой ионизационные камеры, в которых носители заряда, образовавшиеся при поглощении ядерных излучений, собираются на электродах. Недавние обзоры по полупроводниковым детекторам опубликованы, например, в работах [306, 307].

1.7.4.1. Свойства полупроводников.

Описание зонной теории полупроводников, процессов переноса носителей заряда в полупроводниках приведено, например, в работах [308...312].

Поглощение излучения всегда сопровождается образованием одного или нескольких вторичных электронов с большой энергией, которые обуславливают дальнейшую ионизацию. Каскадный процесс продолжается, пока энергия хотя бы одного электрона достаточна, чтобы вызвать ударную ионизацию. Преимуществами полупроводниковых детекторов являются [260]: небольшая энергия, расходуемая на образование одной электронно-дырочной пары (порядка 3 эВ для Si и Ge); значительно большая тормозная способность детектора по

сравнению с газонаполненными; возможность регистрации всего спектра сигналов одновременно.

Гамма лучи теряют свою энергию в результате Комптон эффекта и фотоэффекта [259], при этом образуется быстрый электрон, который потом можно рассматривать как бомбардирующую частицу, хотя она и не падает на поверхность детектора. Акты ионизации вследствие столкновений электрона высокой энергии можно рассматривать как упругие столкновения «бильярдных шаров», при которых сохраняется энергия и импульс, следовательно, пороговая энергия электрона, необходимая для образования электронно-дырочной пары, равна ширине запрещенной зоны E_g , пороговая энергия ударной ионизации будет больше и составляет примерно $1,5E_g$, если масса электрона и дырки одинаковы. Если они не одинаковы, пороговая энергия будет существенно больше. Когда энергия электрона приближается к пороговой величине, он может также потерять энергию, взаимодействуя с кристаллической решеткой [313] (возникновение оптических фононов).

Ионизирующая частица [260], попадающая в полупроводник, переводит электроны из валентной зоны в зону проводимости или вышерасположенные зоны, что создает набор электронно-дырочных пар. В результате вторичных взаимодействий и диссипаций за очень короткое время ($\sim 10^{-12}$ с) все электроны оказываются на дне зоны проводимости, а дырки – на верху валентной зоны.

Необходимо отметить отсутствие в литературе детального описания полных процессов диссипации энергии.

Для количественного описания кинетики неравновесных процессов в полупроводниках применяют понятия среднего времени жизни неравновесных электронов в зоне проводимости τ_n и дырок в валентной зоне τ_p . Времена жизни неравновесных носителей заряда и процессы, приводящие к рекомбинации в полупроводниках рассмотрены, например, в работах [309, 310, 314]. В полупроводниках Si и Ge зоны являются непрямыми. В этом случае испускание фотонов при рекомбинации является необходимым с точки зрения момента количества движения [310]. Вследствие этого вероятность межзонной

рекомбинации электрона и дырки мала, а соответствующие времена жизни при комнатной температуре оказываются порядка нескольких секунд [315]. В реально же изготовленных полупроводниках времена жизни сильно зависят от качества изготовления и не превышают нескольких сотен микросекунд. Наиболее интенсивный процесс рекомбинации носителей происходит через дополнительные уровни в запрещенных зонах, см., например [316, 317]. Подобные уровни возникают на примесях в полупроводнике и дефектах кристаллической решетки. Вблизи же поверхности полупроводника количество дефектов решетки резко возрастает. Для того, чтобы электрон был захвачен на энергетический уровень атома, ему необходимо потерять часть своей энергии: эта энергия может быть передана фотону, другому электрону или дырке, оптическим фононам, акустическим фононам [318].

В полупроводниковом материале, не содержащем примесей и дислокаций, в запрещенной зоне нет энергетических уровней, поэтому количество электронов в зоне проводимости определяется только шириной запрещенной зоны и температурой. Если n - число электронов в зоне проводимости, то

$$n = N(E)e^{-E_g/kT},$$

где $N(E)$ – плотность состояний электронных уровней. При комнатной температуре удельное сопротивление Si ($E_g=1.1$ eV) составляет $2 \cdot 10^5$ Ом*см, а Ge ($E_g=0.65$ eV) – 47 Ом*см.

Наличие примесей и дислокаций в реальных образцах кремния и германия многократно увеличивает их собственную проводимость.

Один из способов уменьшения собственной проводимости заключается в охлаждении полупроводника [319], другой в частичной компенсации проводимости путем введения легирующих элементов. Следует отметить, что в данной работе отмечается разная роль происходящих в веществе детектора процессов при поглощении гамма фотона, детальная их роль при радиационных потерях в детекторах не рассматривается.

Описание скоростей носителей заряда в полупроводнике с помощью их подвижностей μ является лишь первым приближением. В сильных

полях зависимость скорости от приложенного электрического поля становится нелинейной. Зависимость скорости электронов и дырок в кремнии приведена, например, в работе [320]. Следует отметить изменение подвижности электронов и дырок больше, чем на порядок при переходе от температуры жидкого азота к комнатной, а также резкое падение подвижности в полях с напряженностями порядка сотен вольт на сантиметр.

1.7.4.2. Сбор заряда и мертвый слой

В любом приборе, основанном на ионизационном принципе действия, основную информацию об энергии частицы несет собранный заряд. При этом для нахождения детектора в режиме спектроскопии должны выполняться следующие условия [260]:

- трек частицы (рентгеновского фотона) должен полностью укладываться в чувствительной области детектора (т.е. в области сильного поля);

- неравновесные заряды, генерированные частицей, должны полностью собираться на электроды, что обеспечивает пропорциональность электрического сигнала поглощенной энергии;

- флуктуации выходного сигнала должны быть минимальными, чтобы обеспечить высокую разрешающую способность по энергии.

Отметим, что первое условие полностью практически никогда не выполняется и, для оценки оставшейся в детекторе энергии, следует решить тем или иным методом транспортное уравнение для переноса рентгеновского излучения и электронов высоких энергий за пределы чувствительной области детектора.

Сигнал, служащий для регистрации частицы и определения ее энергии, обусловлен разделением электронно-дырочных пар около трека частицы и собиранием носителей заряда на электродах счетчика. Сначала внешнее электрическое поле в счетчике начинает разделять электроны и дырки, однако вследствие этого возникает поляризация, поле которой начинает тормозить разделение зарядов. В этом случае процесс разделения зарядов продолжается за счет биполярной диффузии.

В конце концов, размер колонки увеличивается настолько, что в нее снова может проникать электрическое поле, на этой стадии процесс разделения зарядов заканчивается и начинается собирание зарядов на электродах. Время, необходимое для полного разделения зарядов за счет диффузии, называется плазменным временем, составляет от 10^{-9} до 10^{-8} с. Влияние рекомбинации в течение плазменного времени может быть достаточно важным, поскольку концентрация зарядов внутри колонки на порядок превышает равновесные значения [321]. В случае захвата неравновесных носителей заряда из-за захвата их ловушками описание рекомбинации с помощью среднего времени жизни электронов и дырок становится некорректным, поскольку скорость рекомбинации начинает зависеть не только от концентрации электронов и дырок, но и от концентрации центров рекомбинации и их эффективного сечения захвата. Шум в кремниевых детекторах, обусловленный накоплением заряда в защитном окисле, начинает расти при дозе облучения в доли килогрэй [322].

Поскольку в формировании фронта импульса принимают участие носители обоих знаков [319], время сбора t представляет собой суперпозицию времен собирания носителей обоих знаков. Полученная таким образом величина времени t , будет верхним пределом времени нарастания импульса.

При исследовании выходных импульсов германиевого детектора выяснилось [323], что наряду с импульсами, имеющими временные характеристики, соответствующие толщине чувствительного слоя, наблюдались импульсы с аномально медленными фронтами нарастания.

Результаты сканирования объема детектора тонким коллимированным пучком излучения [319] приведены на рис. 1.10. Медленное собирание образовавшихся носителей объясняется диффузией носителей из областей, прилегающих к $p-i$ и $i-n$ переходам и их медленным дрейфом в пограничном электрическом поле малой напряженности. Наличие таких импульсов при ограничении полосы пропускания усилительного тракта приводит также к некоторому искажению аппаратурной линии.

Результаты подобного сканирования детектора по поверхности могут быть применены для оценки расположения детектора под своим окном без его снятия [324].

Эффективность собирания зарядов и форма наблюдаемого импульса сложным образом [325] зависят от процессов рекомбинации, сбора заряда, захвата ловушками и т.п. Возможны четыре основных варианта развития процессов:

1. Полное собирание заряда (захват ловушками и рекомбинация отсутствуют);
2. Кратковременный захват ловушками (носители проводят некоторое время на ловушках, но, в конце концов, собираются на электродах);
3. Частичная рекомбинация;
4. Длительный захват ловушками (время, которое проводят носители в ловушках, превышает время диэлектрической релаксации).

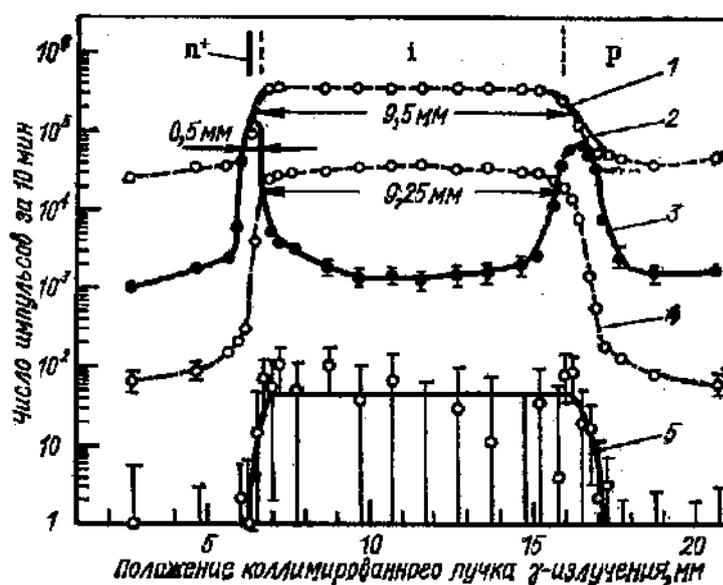


Рис. 1.10. Распределение быстрых и медленных импульсов в планарном Ge(Li) детекторе, работающем при напряжении смещения 900В и температуре примерно 77К [319]. Источник - ^{137}Cs . 1- сумма быстрых и медленных импульсов, 2 – быстрые импульсы, интегральный счет, 3 – медленные импульсы, интегральный счет, 4 – быстрые импульсы, счет в пике полного поглощения, 5 – медленные импульсы, счет в пике полного поглощения.

В первом случае поведение носителей обоих знаков соответствуют полному сбору заряда. Этот случай наиболее благоприятен для целей спектроскопии. Время сбора заряда мало и не превышает время сбора носителей с самой малой подвижностью τ_c . Время спада импульса равно постоянной времени τ цепи.

Неполный сбор заряда происходит в том случае, когда не все носители заряда доходят до электродов (рис. 1.11). Прежде всего, носители заряда могут рекомбинировать у трека частицы. Этот процесс наиболее важен для сильно ионизирующих частиц и осколков деления. Но во многих случаях ухудшение разрешения, обусловленное подобной рекомбинацией, меньше того, которое обусловлено статистическими флуктуациями числа пар ионов N [259].

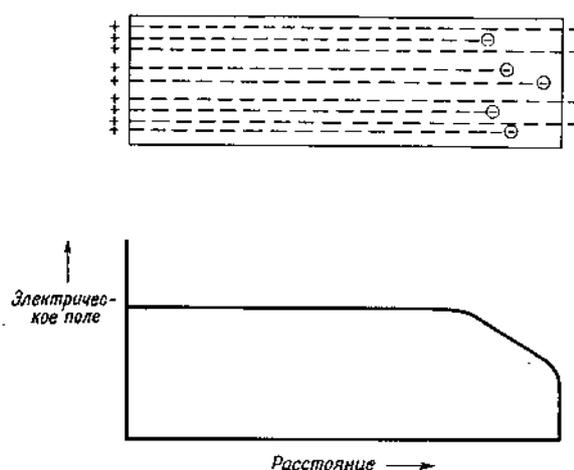


Рис. 1.11. Иллюстрация образования «мертвого слоя» [259].

Вторая причина расширения состоит в том, что некоторые носители заряда, отошедшие от трека частицы, не достигают электродов счетчика. Вероятность того, что любой носитель пройдет расстояние, превышающее y в направлении приложенного поля, равна $\exp\left(-\frac{y}{\mu \cdot E \cdot \tau_p}\right)$.

В бесконечно большом счетчике, в котором ни один носитель заряда не дойдет до электродов, среднее смещение равно $\mu \cdot E \cdot \tau_p$, и среднеквадратичное отклонение также равно $\mu \cdot E \cdot \tau_p$. Следовательно, для импульса, образованного N зарядами, среднеквадратическое

отклонение, обусловленное данной причиной, имеет величину, сравнимую с флуктуациями числа N . Если размеры счетчика достаточно малы и некоторые носители собираются на электродах, то среднеквадратическое отклонение имеет меньшую величину и в пределе становится незначительным. В случае, когда к счетчику прикладываются сильные электрические поля, правильнее рассматривать среднюю длину дрейфа носителей до центров рекомбинации, однако это рассмотрение не сильно отличается от вышеприведенного. В любом случае неполное собирание заряда определяется в том числе и геометрическими факторами [259].

Случаи, когда при детектировании излучения длины дрейфа носителей переменны внутри детектора, а также возникающее дополнительное уширение линий полного поглощения рассмотрены в работе [325]. Сделан вывод, что такие детекторы слабо подходят для регистрации рентгеновского и гамма излучений.

Измерение толщин мертвого слоя описано, например, в работах [319, 326...329]. При прецизионных измерениях энергий ионизирующих частиц столкнулись с фактом, что зависимость между энергией такой частицы и собранным зарядом не проходит через ноль координат. Анализ причин данного явления показал, что заряженная частица теряет часть своей энергии как в окне детектора, так и в некотором нечувствительном слое, который и получил название «мертвый слой». Один из самых простых способов измерения толщины мертвого слоя – измерение зависимости между амплитудой выходного сигнала ППД и энергией заряженной частицы. Недостатками подобного метода является то, что не всегда строго учитываются условия измерения: толщина активного слоя излучателя, потери энергии частицы при ее движении от излучателя до детектора и т.п. Более точным является метод, основанный на измерении энергетических потерь ионизирующих частиц при их падении на детектор под разными углами. Измерение эффективности сбора заряда внутри мертвого слоя приведено в работе [330]. Наиболее точный метод основан на использовании для этих целей пучков ускоренных частиц, например [331]. В зависимости от способа

изготовления и температуры толщина мертвого слоя Si(Li) детектора может составлять как 300-500 мкм [332], так и 20-40 мкм [333]. Для HPGe детекторов он может составлять 400-1000 мкм [334], так и порядка 0,1 мкм [335]. В работе [328] определение толщины мертвого слоя для Si(Li) детекторов выполнялось по сдвигу регистрируемой линии электронов конверсии изотопа ^{207}Bi с энергией 975 кэВ. Выбор значения постоянной времени интегрирования τ также влияет на измеряемую толщину «мертвого слоя» [336]. Так, при температуре 300 К, для Si(Li) детектора увеличение времени τ от 0,5 до 2 мкс приводит к «уменьшению» толщины мертвого слоя в 1,2-1,5 раза. В работе [337] толщина мертвого слоя оценивается с помощью тормозного излучения протонов (облучаются тонкая бериллиевая и толстая углеродная мишени) в диапазоне энергий 1-10 кэВ (для этого протоны имеют энергию 2-3 МэВ). В работе [338] рассмотрены Si(Li) детекторы с толщиной мертвого слоя 0,2 мкм (золотой контакт) и 0,1 мкм (палладиевый контакт).

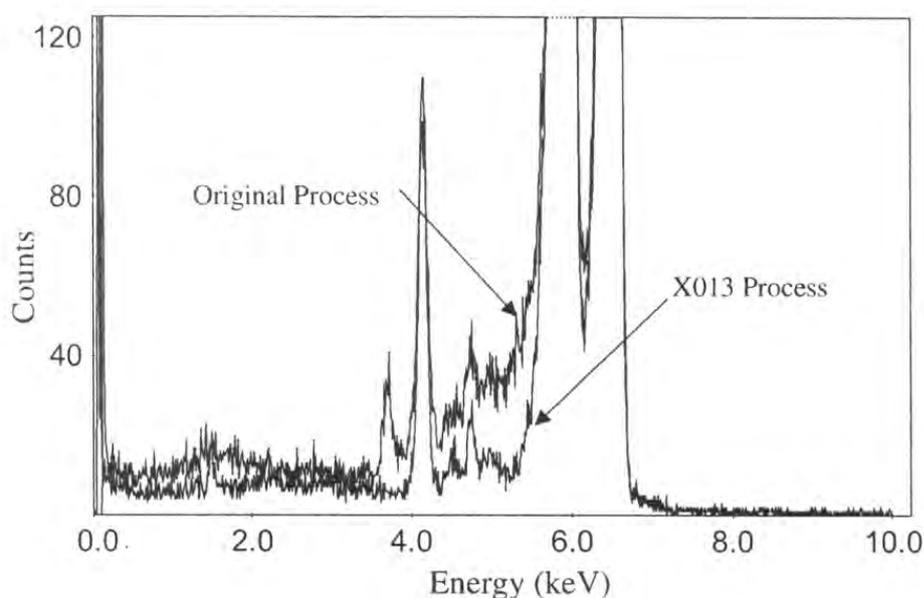


Рис. 1.12. Сравнение спектров импульсов детекторов, полученных по разным технологическим процессам [339] при регистрации излучения источника ^{55}Fe .

Достаточно редко встречается информация о том, какие технологические процессы приводят к каким параметрам детекторов. В работе [339] при сравнении детекторов, изготовленных по разным технологиям, сделан вывод о преимуществах технологии поверхностного травления SiO с последующей металлизацией Au/Pd толщиной 150 Å (см. рис. 1.12).

Следует отметить, что применяемые методы травления поверхности детектора в первую очередь влияют на количество приповерхностных ловушек и центров рекомбинации, что обеспечивает разное качество сбора заряда из объема детектора.

Различение импульсов детектора из областей детектирования с разным количеством ловушек аналоговыми методами затруднительно, однако в случае цифровой фильтрации подобные алгоритмы по оценке полного собранного заряда могут быть реализованы, что в ряде случаев приводит к улучшению качества анализируемого спектра.

При облучении детектора пучком моноэнергетических частиц имеется некоторый разброс амплитуд, который удобно характеризовать среднеквадратичным отклонением σ . Чем меньше величина σ , тем лучшим спектрометром является счетчик. Среднеквадратическое отклонение складывается из ряда членов, некоторые из них обусловлены самой природой процессов, другие зависят от способа изготовления. В дальнейшем предполагается, что счетчик достаточно велик, чтобы в нем полностью поглощались заряженные частицы. При рассмотрении β и γ излучения возникает ряд трудностей, поскольку эти процессы сложнее, чем в случае тяжелых частиц. Чтобы отразить эти процессы, можно включить соответствующие им дополнительные члены в величину среднеквадратического отклонения [259]. Наиболее существенный член в выражении обусловлен флуктуациями числа пар ионов, создаваемых заряженной частицей. Рассмотренный ранее процесс ионизации является каскадным, в котором имеется конечное число независимых актов ионизации, приводящих к образованию N пар ионов; при этом не остается ни одного электрона, энергия которого бы превышала пороговую энергию ударной ионизации. Тогда

$$\begin{aligned}
 q &= N \cdot e \\
 \sigma &= e\sqrt{N} \\
 \frac{\sigma}{q} &= \frac{1}{\sqrt{N}} = \sqrt{\frac{\omega}{E}}, \quad (1.77)
 \end{aligned}$$

где ω - средняя энергия, затрачиваемая на образование одной пары ионов (электрон+дырка), E – энергия частицы.

Энергетическое разрешение детектора определяется в первую очередь числом образующихся пар $n=E_0/\varepsilon$, где E_0 – энергия регистрируемого фотона, ε - средняя энергия образования пары [20]. Полагая, что процесс образования носителей (фотоэлектронов) представляет собой последовательность независимых актов, и принимая распределение гауссовым, получают полуширину пика амплитудного распределения

$$W_{1/2} = 2.36 \sqrt{\frac{F \cdot \varepsilon}{E_0}}, \quad (1.78)$$

где F - фактор Фано [265], вводимый для описания взаимной зависимости актов ионизации. Средняя энергия ε , необходимая для образования пары, составляет 26 эВ для аргона, 22 эВ для ксенона, 2,8 эВ для германия, 3,5 эВ для кремния и 300 эВ для NaI(Tl).

В дальнейшем будет показано, что процесс регистрации фотона в детекторе нельзя описывать независимыми процессами образования носителей, т.к. процессу диссипации энергии образовавшегося электрона всегда будет предшествовать событие – фотопоглощение или комптоновское рассеяние фотона.

1.7.4.3. Конструкции полупроводниковых детекторов

Конструкции полупроводниковых детекторов описаны, например, в работах [340, 341]. Подобный детектор состоит из чувствительного блока, состоящего из высокоомного Si или Ge (высокоочищенного или легированного литием), двух электродов, на которые через резистор или другой генератор тока подается высокое напряжение, предусилителя, подключенного к этим электродам.

По типу используемой проводимости, особенностям чувствительного слоя полупроводниковые детекторы (ППД) делят [319] на ППД с электронно-дырочными переходами и ППД проводящего типа. Различают два основных типа электронно-дырочных ППД р-n типа и р-i-n типа. Среди детекторов р-n типа наибольшее распространение получили поверхностно-барьерные детекторы и диффузионные с чувствительной областью, созданной в результате диффузии соответствующих примесей в полупроводниковый материал. Среди ППД р-i-n типа наибольшее распространение получили диффузионно-дрейфовые детекторы, в которых чувствительная область создается в результате диффузии и дрейфа ионов легирующей примеси в полупроводниковый материал.

Конструкция Si(Li) р-i-n детектора большого объема с чувствительной областью 60*30*5 мм рассмотрена в работе [342]. Технология диффузии лития, проводящаяся при температурах около 500⁰С, описана, например, в работах [343, 344].

Совершенствование параметров кремния и технологии изготовления ППД привело к повышению рабочего напряжения. Введением охранных колец исключали вклад шумов, обусловленных поверхностными токами утечки. При использовании метода компенсации полупроводникового материала литием появилась возможность изготавливать детекторы с толщиной чувствительной области до 10-15 мм. Применение лития связано с тем, что в материале детектора он находится в ионизированном состоянии и способен дрейфовать при приложении внешнего электрического поля. В результате создается i-слой материала с проводимостью, близкой к собственной проводимости полупроводника. Следует отметить, что из-за высокой подвижности лития в полупроводниках, такие детекторы необходимо постоянно содержать при низких температурах для сохранения их эксплуатационных характеристик.

Другим способом компенсации примесной проводимости заключался в создании радиационных дефектов в полупроводниковом

материале n типа. В настоящее время активно развивается технология изготовления детекторов из сверхчистого германия.

Особенности конструкции полупроводниковых детекторов большой площади с усилительным каскадом, собранном в едином кристалле с основным материалом детектора, рассмотрены в работах [345, 346].

В работе [347] рекламируются Si p-i-n, CdTe p-i-n CdZnTe детекторы с охлаждением с помощью Пельтье эффекта. В работе уделяется значительное внимание такому параметру, как ширина пика на полувысоте, однако отсутствует рассмотрение параметров хвостов, характеризующих фон детектора вдали от регистрируемой линии.

1.7.5. Регистрирующая электроника.

1.7.5.1. Предварительный усилитель детектора и формирующий усилитель.

Детектор является генератором тока с большим выходным сопротивлением. Эквивалентная схема входной цепи предусилителя включает в себя источник сигнала – детектор, полевой транзистор и шумовые источники, действующие на входе предусилителя [260]. На входную емкость предусилителя C поступает заряд Q , создаваемый в детекторе в результате регистрации фотона, так что входной сигнал представляет собой перепад напряжения с амплитудой $S = Q/C$.

Обычно учитываются два основных источника шума. Первый из них («параллельный» шум) вызван обратным током детектора и входным током полевого транзистора, и сопротивлениями утечек и резисторами, включенными параллельно входу. Второй источник шума входного каскада определяется принципом работы входного усилительного прибора. Для полевого транзистора эквивалентное шумовое сопротивление $R_s \approx \frac{1}{S}$, где S – крутизна транзистора.

Имеются также «избыточные шумы» [348], являющиеся разновидностью токовых шумов и напоминающие фликкер-шум, физические основы которых изучены сравнительно мало.

Усилитель-формирователь (спектрометрический усилитель) предназначен для придания сигналу оптимальной формы с точки зрения оптимального отношения сигнал/шум при минимальной длительности импульса [349]. Выбор наилучшей частотной характеристики $K(\omega)$ спектрометрического тракта с целью получения максимального отношения сигнала к шуму составляет сущность фильтрации [350]. Оптимальное формирование импульса с одновременной минимизацией влияния наложений импульсов рассмотрено в работах [351, 352].

Формы импульса, используемые на практике, приведены, например, в работах [2, 271, 319].

Следует отметить, что характеристическое время T_m должно быть больше времени сбора заряда с детектора. Несоблюдение этого правила может привести к появлению длинноволнового хвоста у наблюдаемой спектральной линии, форма которого будет существенно зависеть от переходной характеристики фильтра и разброса времен сбора заряда.

Результат применения [353] системы сбора данных с различным временем интегрирования показывает значимость увеличения времени T_m для улучшения шумовых характеристик измеряемого спектра.

Результаты применения методов цифровой фильтрации для получения амплитудного спектра приведены в работе [354] для газовых пропорциональных счетчиков и в работах [355, 356] для Si(Li) детектора. В последней работе показано (рис. 1.13), что цифровыми методами по форме импульса, возможно отсечь часть хвостов линий с низкоэнергетической стороны, которая образуется из-за неэффективного сбора заряда вблизи поверхности детектора.

Следует отметить, что алгоритмы цифровой фильтрации в открытой печати детально не обсуждаются.

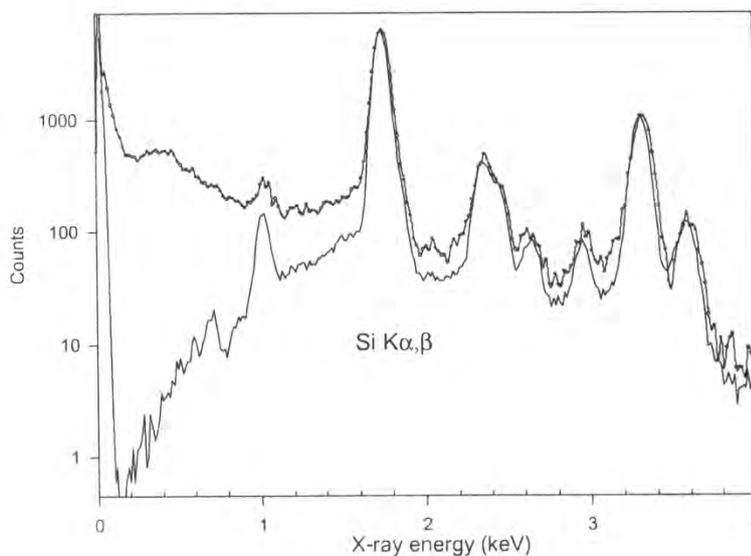


Рис. 1.13. Сравнение спектров $\text{Si K}\alpha$. Спектр, собранный аналоговым процессором (верхний) и цифровым процессором CSX2 фирмы Cambridge Scientific (нижний) [356].

1.7.5.2. Амплитудный дискриминатор и анализатор.

Амплитудные дискриминаторы представляют собой устройства, которые обеспечивают стандартизированный выходной сигнал, если амплитуда входного импульса превышает установленный порог дискриминации (интегральные дискриминаторы) или заключена в некоторых пределах, определяемых шириной окна (дифференциальные дискриминаторы). Существует достаточно много схем дискриминаторов, описанных, например, в работе [271]. Необходимость дискриминации сигнала по нижнему порогу сомнений не вызывает, вследствие необходимости отсекаания шумов детектора.

Нестабильность порогов дискриминатора, также как и нестабильность параметров спектрометрического канала (включая коэффициент газового усиления) вносят погрешности в точность измерения интенсивности аналитической линии.

Амплитудные анализаторы представляют собой устройства, накапливающие и анализирующие спектральный состав импульсов, приходящих с детекторов. Как правило, после этого спектры импульсов

обрабатываются ЭВМ с выделением нужной линии. Обзоры принципов построения подобных схем приведены в работах [2, 357, 358].

В главе 5 вопрос минимизации влияния наложений различных порядков отражения кристалла будет рассматриваться на основе анализа амплитудных спектров импульсов.

1.7.5.3. Режекция наложений импульсов.

Время попадания в детектор фотона является случайным. Существует вероятность того, что два фотона попадут в детектор почти одновременно [2].

Режекция наложений выполняется с помощью быстрого тракта (БФУ-РН на рис. 1.2). Она возможна, когда два импульса достаточно разнесены во времени, что искажает форму выходного сигнала. Следует отметить, что режекция наложений импульсов может быть выполнена не всегда [2], а, следовательно, в регистрируемом спектре появятся дополнительные пики с энергиями, равными сумме энергий основных пиков (pileup), что в некоторых случаях затрудняет расшифровку спектров, и, следовательно, является специфическим видом фона, с существенно нелинейной зависимостью интенсивности в зависимости от интенсивностей регистрации основных ярких линий.

При росте интенсивности счета ширина спектральной линии будет увеличиваться, причем цифровые методы фильтрации по сравнению с аналоговыми позволяют реализовать алгоритмы с лучшими спектральными характеристиками при высоких скоростях счета [356].

1.7.6. Параметры функции отклика полупроводниковых детекторов.

В рентгеновской области излучения поглощение рентгеновского фотона в веществе детектирующего блока происходит в процессе фотопоглощения либо комптоновского рассеяния [259]. В случае полного поглощения веществом детектора фотон регистрируется в пике полного поглощения. В случае фотопоглощения веществом детектора

ионизированный атом детектирующего блока может испустить фотон, либо разрядиться путем набора Оже-переходов. После испускания флуоресцентного фотона последний может покинуть чувствительную область детектора. Оставшиеся в веществе детектора фото и Оже электроны преобразуются в набор низкоэнергетических электронов и дырок и будут зарегистрированы в пике фотопотерь с энергией, меньшей чем энергия фотона на величину энергии покинувшего детектор фотона, см., например [341]. Подобный эффект возможен и в результате комптоновского рассеяния, когда рассеиваемый фотон теряет в детекторе лишь часть энергии, и покидает чувствительный объем детектора. В этом случае фотон будет зарегистрирован в «горбе потерь».

В первом приближении эффективность детектора (вероятность полного поглощения фотона в детекторе) P_{eff} можно оценить [359] как

$$P_{eff}(E) = \exp\left(-\sum_i \rho_i \mu_i(E) t_i\right) (1 - \exp(-\rho_{ногл} \mu_{ногл}(E) t_{ногл})) \quad (1.79)$$

При этом первый множитель описывает процесс поглощения излучения во входных окнах и т.п., т.е. излучение, которое не доходит до основного поглотителя детектора, второй множитель описывает эффективность самого поглотителя. Спектр, получаемый с детектора согласно работе [359], представлен на рис. 1.14, при этом низкоэнергетический шлейф p связывается с комптоновским рассеянием фотона в детекторе. В данной работе этот шлейф будет в дальнейшем называться «горбом потерь» (“Low energy Compton escape plateau”).

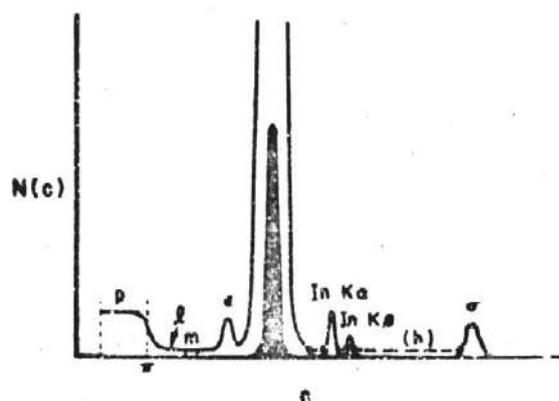


Рис. 1.14. Спектр импульсов, снимаемых с Si(Li) ППД [359].

В работе [341] указывается, что при возрастании вероятности комптоновского рассеяния, эффективность лучше описывается формулой

$$P_{eff}(E) \approx (1 - P_{ph})(1 - \exp(-(\tau + K_{SA}\sigma_S)\rho \cdot d / \sin(\varphi))), \quad (1.80)$$

где поправочный множитель

$$K_{SA} = 1 - \exp(-\mu \cdot \rho \cdot d / \sin \varphi) \quad (1.81)$$

В работах [360, 361, 362] описание функции отклика детектора выполнено в виде, показанном на рис. 1.15.

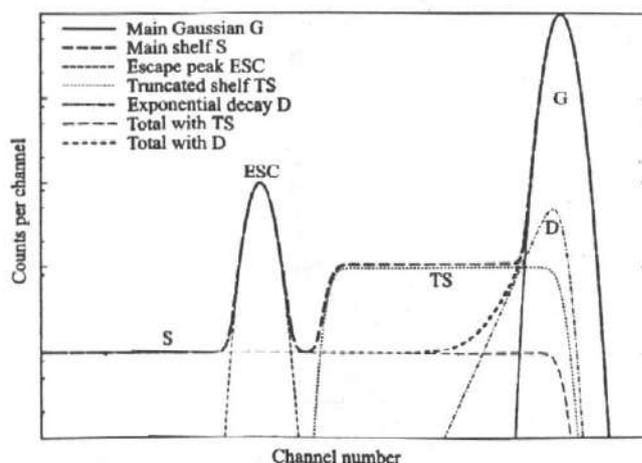


Рис. 1.15. Функция отклика детектора согласно работе [362].

При этом для описания функции отклика $F(E)$ используются следующие выражения [362, 363]:

$$F(E) = G(E) + S(E) + D(E) + Esc(E) + T(E) \quad (1.82)$$

$$G(E) = H_G \exp\left[-\frac{(E - hv)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (1.83)$$

$$S(E) = H_S \frac{1}{2} \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{E - hv}{\sigma\sqrt{2}}\right) \right] \quad (1.84)$$

$$D(E) = H_D \frac{1}{2} \exp\left(\frac{E - hv}{\beta}\right) \times \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{E - hv}{\sigma\sqrt{2}} + \frac{\sigma}{\beta\sqrt{2}}\right) \right] \quad (1.85)$$

$$Esc(E) = H_{Esc} \exp\left(-\frac{(E_{esc} - E)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (1.86)$$

G – пик, имеющий гауссову форму, связан с полным поглощением энергии фотона вдали от краев детектора, ESC- пик связан с потерей энергии флуоресцентного фотона, S- плато связано с выходом электронов высоких энергий, плато TS связано с поглощением фотона и последующими диффузионными эффектами.

При этом низкоэнергетическое плато, обозначенное на рис. 1.28 как p , в работах [362, 364, 365], не рассматривается.

Форма пика фотопотерь и соотношения его интенсивности с интенсивностью основного пика поглощения детектора приведены на основе экспериментальных данных в работе [364], для набора Si(Li) детекторов, однако только для одной энергии излучения (источник ^{55}Fe).

Интенсивность пика потерь (ESC на рис. 1.29) для плоского планарного детектора описывается выражением [366...368]

$$p_{esc}(E) = \frac{1}{2} \cdot \omega_{iK} \cdot p_{iK} \cdot S_K \cdot \left[1 - \frac{\mu(E_{iK})}{\mu(E)} \cdot \cos \theta \cdot \ln \left(1 + \frac{\mu(E)}{\mu(E_{iK}) \cdot \cos \theta} \right) \right], \quad (1.87)$$

В работе [369] анализируется соотношение между пиком фотопотерь и пиком полного поглощения и делается вывод о том, что для данной энергии излучения это соотношение является почти константой для различных детекторов.

Качественный анализ отношения основного пика к пику фотопотерь для газовых (в предположении достаточно тонкого детектора по сравнению с длиной пробега флуоресцентного фотона) и Ge и NaI(Tl) (в предположении полубесконечно толстого детектора) детекторов приведен в работе [20], однако в работе не анализируется, как это соотношение будет изменяться с изменением размеров детектора.

В [370] предложено приближенное выражение для описания относительной величины пика вылета и фотопика

$$N_{p.Bi} = \frac{\omega(S-1)/S}{2[1 - \exp(-\mu \cdot \rho \cdot d / \sin \varphi)]} \left[1 - \frac{\ln(1 + \mu / \mu_i \sin \varphi)}{\mu / \mu_i \sin \varphi} \right] \quad (1.88)$$

Результаты анализа функции отклика высококачественных Si и Ge детекторов приведены в работе [353] для диапазона энергий фотонов 2-20 кэВ. В работе проанализированы также некоторые параметры этих

функций с точки зрения времени сбора заряда в спектрометрических усилителях.

Образование шлейфа из-за выхода электронов высоких энергий, образующихся в образце при взаимодействии вещества детектора с излучением описано в работе [364]. Расчеты производятся в приближении полубесконечного объема детектора, на основании сечений фотопоглощения [371] и тормозной способности вещества [372]. Однако в расчетах этой работы также не оцениваются процессы потерь энергии вследствие радиационного переноса. В работе [260] вообще считается, что процесс поглощения ($\Pi(E_0, E)$ на рис. 1.14) не искажает спектр излучения.

В работах [341, 373] интенсивность «горба потерь» предлагается рассчитывать в предположении однократного взаимодействия по формуле

$$N_K(E) \approx \frac{d\sigma_s^{NK}(\Theta, E)}{2\mu(1 - \exp(-2\mu \cdot \rho \cdot d / \sin(\varphi)))}, \quad (1.89)$$

при этом указано, что данная аппроксимация обладает следующими ограничениями: обрывом спектра со стороны малых энергий, тогда как без учета связи электронов в атоме комптоновское распределение в низкоэнергетической части максимально.

В работе [374] также упоминается о «горбе потерь», возникающем в германиевом детекторе, однако для германиевого детектора при энергии фотонов 60 кэВ вероятность регистрации в нем не является существенной. В работе [375] для Ge детектора было проведено моделирование параметров функции отклика Ge детектора, в том числе горба потерь в приближении угла комптоновского рассеяния 180 градусов. Однако для кремниевого детектора такое приближение является неприемлемым.

В работе [376] детально рассматривает только процесс формирования «горба потерь» и пренебрегает расчетами вероятностей регистрации фотона в других частях функции отклика.

В работе [377] было показано, что для точного описания «горба потерь», расчет сечения комптоновского рассеяния должен быть

выполнен с учетом распределения момента рассеивающих электронов, например, [146].

Примером исследования параметров функции отклика детектора в части электронного хвоста потерь и переноса электронов может быть работа [378].

Учет геометрических особенностей системы источник излучения – детектор при сжатой геометрии спектрометрической установки с помощью метода Монте-Карло приведен в работе [379]. Поправки в эффективность при рассмотренных условиях (8 см расстояние между детектором и источником излучения, 4,5 мм толщине Si(Li) детектора, 8 мм коллиматоре могут достигать 15% из-за неперпендикулярности падения излучения на детектор.

В работе [380] изучается поведение характеристик усиления и энергетического разрешения детекторов большой площади на наборе p-n переходов.

Исследование аномалий отклика кремниевых и германиевых детекторов, произведенных по различной технологии, в т.ч. появление медленной компоненты импульса при сверхнизких температурах проведено в работе [381].

Исследование тонкой структуры поведения эффективности детектора в районе низких энергий (100 эВ – 2 кэВ) проведено в работах [382, 383], показано, что эффективность будет определяться поглощением во входном окне детектора и слоях тонких пленок электродов. В районе низких энергий регистрируемого излучения (1000 эВ и ниже) важным также является [384] учет слоя льда и гидрокарбона, образующихся на поверхности детектора при его изготовлении и работе. Отсутствие учета данного фактора может привести к некорректным результатам обработки спектров в этой области энергий.

В работе [385] путем подгонки экспериментальных и расчетных значений анализируются вклады в форму регистрируемого спектра от образца и детектора, однако только для низких энергий регистрируемого излучения, где комптоновское рассеяние излучения в детекторе несущественно.

В работе [386] исследуются с точки зрения метрологии такие характеристики Ge детектора, как толщины слоев окон, мертвого слоя, слоев электродов с использованием синхротронного излучения и настраиваемого монохроматического источника SOLEX (рентгеновская трубка и монохроматор). Толщины слоев измеряются по скачкам поглощения и сопоставляются с результатами Монте-Карло моделирования с помощью программы PENELOPE.

AsGa детектор рассматривается, например, в работе [387], однако без анализа особенностей функции отклика детектора и учета пиков фотопотерь в рентгеновской области излучения.

Формирование сигнала и фона применительно к рентгенофлуоресцентному спектрометру рассматривается в работах [78, 388] однако детальное математическое описание процессов формирования функции отклика детектора в указанных работах не приводится.

В недавней работе [389] при анализе эффективности в пике полного поглощения указывается на вероятности выхода из детектора фотонов в пиках фотовылета и в горбе потерь, обусловленном выходом из детектора комптоновски рассеянного фотона, однако влияние этих процессов на форму функции отклика детектора не показано.

Из проведенного анализа становится ясно, что при описании функции отклика детектора в последнее время часто упускался из виду процесс комптоновского рассеяния в детекторе с последующим выходом фотона из детектора. Это особо значимо для описания функции отклика Si детектора. Для работ [362, 364...367, 382, 383] это может быть допустимо, поскольку рассматриваемый в них диапазон энергий для Si детектора не превышает 10 кэВ. В реальных условиях рентгенофлуоресцентного анализа диапазон энергий практически всегда значительно шире (до 75 кэВ), что при описании фона не позволяет пренебрегать образованием «горба потерь» вследствие комптоновского рассеяния фотона в детекторе. В работе [375] выход комптоновски рассеянных фотонов рассматривается только для Ge детектора и только

под углом рассеяния 180 градусов. В работе [341] указано, что формула (1.80) имеет ограниченную применимость.

Следует отметить, что в ряде работ последних лет метод Монте-Карло широко используется для моделирования характеристик Ge детекторов рентгеновского и гамма излучения сложной формы [390 ... 394], при этом моделирование показывает хорошее согласие с экспериментом.

Детальный анализ с использованием метода Монте-Карло регистрации рентгеновского фотона CdTe детектором в пике полного поглощения выполнен в работе [395]. В работе также анализируются вероятности регистрации в фотопиках потерь, однако расчет вероятности регистрации в горбе потерь, обусловленном выходе из детектора комптоновски рассеянного в нем фотона отсутствует.

1.7.7. Комбинированные спектрометры на базе твердотельных детекторов

На рис. 1.16 представлена классификация спектрометров гамма излучения [319].

На форму пиков полного поглощения [319] слабо влияет рассеянное излучение. Пик полного поглощения меньше всего подвержен искажениям. Подобный анализ чаще всего связан с определением значений энергии гамма квантов по положению пиков полного поглощения и площадей под ними. Серьезным недостатком гамма спектрометров с германиевыми детекторами малого объема – сложная форма их аппаратной линии. В таком случае пики полного поглощения слабой интенсивности могут накладываться на непрерывные распределения от более жестких и интенсивных линий. Выше энергий 1,5 МэВ процессы комптоновского рассеяния и образования пар имеют доминирующее значение.

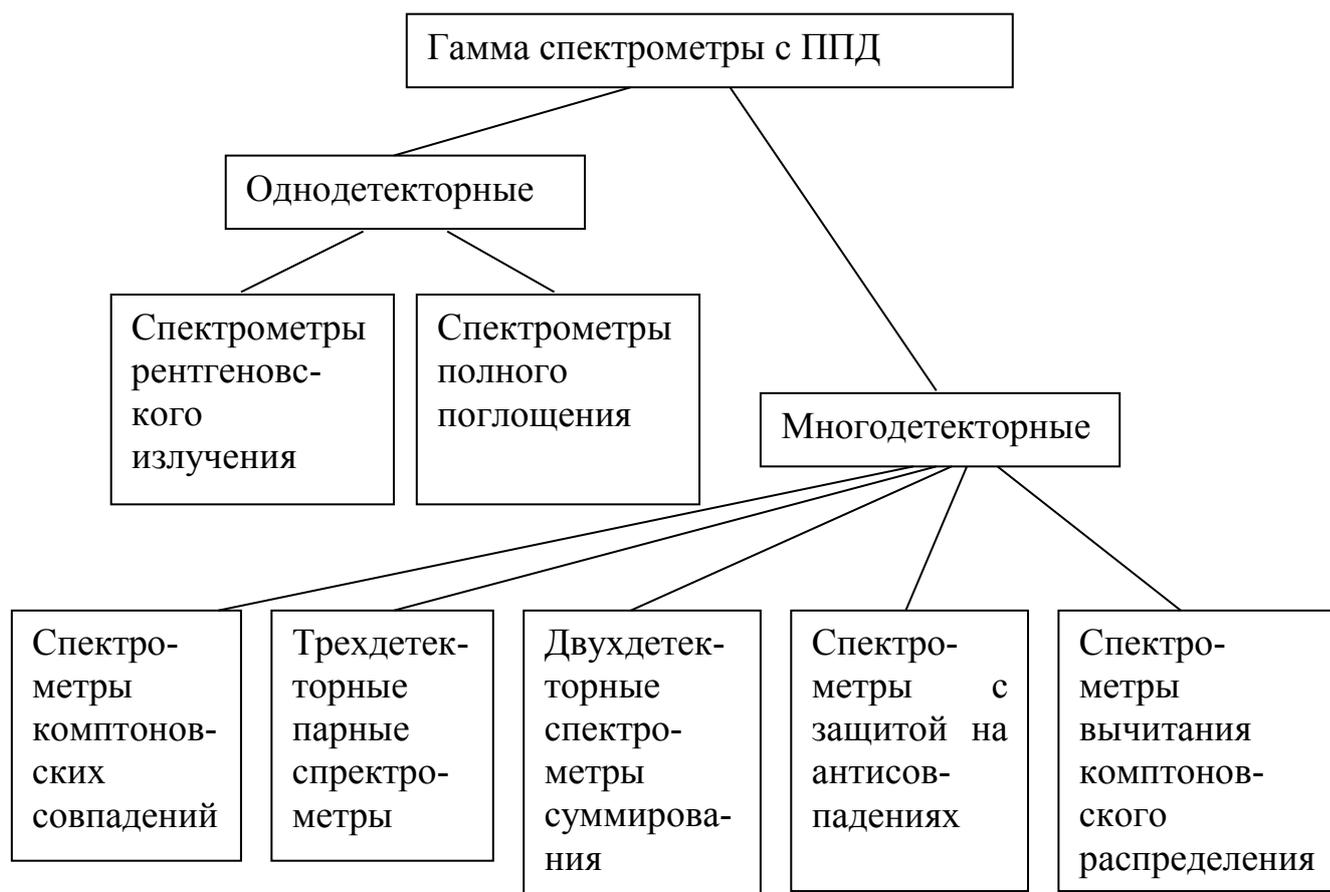


Рис. 1.16. Классификация спектрометров гамма излучения [319].

При еще большей энергии гамма фотонов процесс образования пар является преобладающим, поэтому при работе в такой энергетической области крайне желательно иметь германиевый детектор большого объема.

В области сравнительно жесткого гамма излучения (с энергией фотонов больше 2,5 МэВ) при малом объеме детектора появляются также пики, соответствующие потерям энергии от вылетевшего из детектора позитрона или электронно-позитронной пары. Следует также отметить, что при малом объеме детекторов вероятность регистрации в пике полного поглощения становится значительно меньше, чем вероятность регистрации в «горбе потерь», обусловленном потерей комптоновски рассеянного фотона.

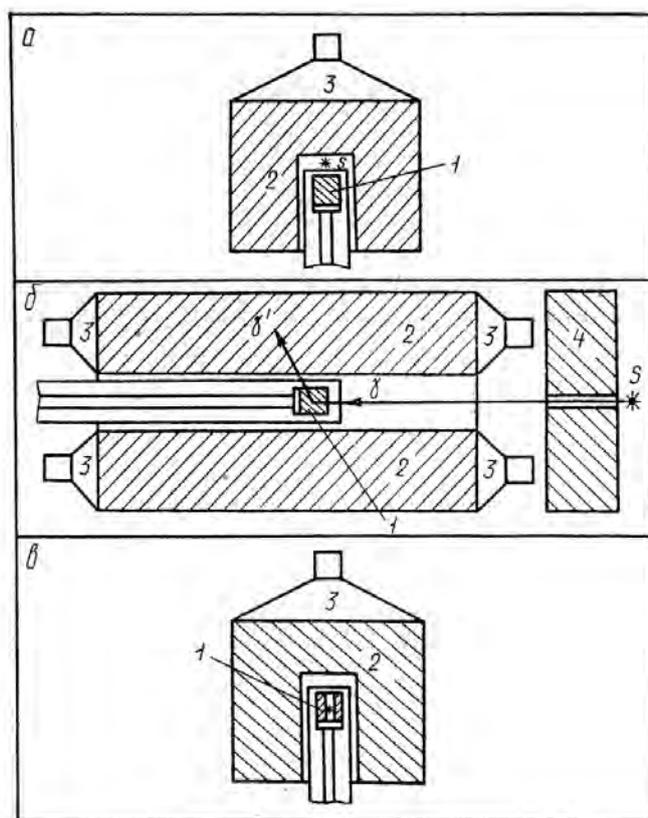


Рис. 1.17. Разновидности спектрометров с защитным сцинтиллятором на антисовпадениях [396]. а – источник внутри защитного сцинтиллятора, б – источник вне защитного сцинтиллятора, в – источник внутри кольцевого анализирующего ППД. 1- ППД, 2 – защитный сцинтиллятор, 3 – фотоумножители, 4 – свинцовый коллиматор, s - гамма источник.

Использовать же Ge детектор большого объема в ряде случаев не представляется возможным из-за высокой стоимости и неудовлетворительного энергетического разрешения. «Горб комптоновских потерь» в случае детектора с малым объемом обусловлен вылетом комптоновски рассеянного фотона за пределы детектора, при этом рассеянный фотон уносит из детектора часть энергии регистрируемого фотона. Подобный фотон можно зарегистрировать сцинтиллятором достаточно большого объема, окружающего детектор (рис. 1.17), например [396]. Подобный сцинтиллятор называют

защитным, при этом комптоновское рассеяние гамма фотона должно сопровождаться регистрацией рассеянного фотона сцинтиллятором.

Если же подать сигналы с ППД и сцинтилляционного детектора на схему антисовпадений, и заблокировать прохождение сигнала с ППД при одновременной регистрации сигнала как с ППД, так и сцинтиллятора, то можно значительно уменьшить вероятность регистрации фотона в «горбе потерь».

Применение гамма спектрометров с защитой на антисовпадениях описано, например, в работах [397...402].

Принцип действия комптоновского спектрометра совпадений основан [319] на регистрации комптоновски рассеянного в ППД фотона с одновременной регистрацией сцинтилляционным детектором комптоновски рассеянного фотона под заданным углом Θ . В ППД в этом случае будет выделена энергия электрона отдачи, а зная угол рассеяния Θ по ней можно восстановить энергию попавшего в ППД фотона. Подобные спектрометры описаны, например, в работах [403...406]

Недостатком кремниевого детектора является то, что вероятность регистрации в «горбе потерь» становится значительной при энергии фотонов более 40 кэВ, что, при наличии в спектре попадающих в детектор фотонов с энергией больше указанной, приводит к увеличению фона в низкоэнергетической области. Недостатком Ge детектора является высокая вероятность регистрации фотона с энергией, большей энергии К края поглощения в пиках фотопотерь (до 20%), вследствие намного большего, чем у кремния, выхода флуоресценции. В некоторых случаях этот процесс затрудняет расшифровку получаемых с детектора спектров.

В патенте [407] описан полупроводниковый детектор ионизирующего излучения, детектирующий блок которого состоит из двух слоев – ближнего к источнику излучения слоя с малым атомным номером и дальнего от источника излучения слоя с большим атомным номером. Однако, поскольку взаимодействие фотона с веществом является процессом случайным, фотон может быть зарегистрирован как в области вещества с малым Z , так и в области вещества с большим Z .

При этом процессы даже полного поглощения дадут импульсы разной амплитуды, что приведет к практической невозможности использования такого детектора в спектрометрических целях.

В патенте [408] описан спектрометр вычитания комптоновского распределения, включающий в себя два полупроводниковых детектора ионизирующего излучения с разными атомными номерами и чувствительной глубиной разной толщины. Толщины детекторов подбираются таким образом, чтобы «горб потерь» имел одинаковую интенсивность (что возможно, поскольку в гамма области сечение комптоновского рассеяния слабо зависит от атомного номера). Результирующий спектр получается в результате вычитания спектра, полученного детектором с меньшим Z от спектра детектора с большим Z . Техническим недостатком такого способа является то, что вероятность регистрации детектором линии в пике полного поглощения в гамма области излучения мала, что обуславливает большую величину статистической погрешности, связанной с флуктуациями счета импульсов.

В работах [401, 409...412] описаны комбинированные детекторы гамма излучения и электронные схемы их включения. В них используется один и тот же материал (Ge) для обоих детекторов. Конструкция таких спектрометров оптимизирована для суммирования амплитуд импульсов, регистрирующихся в «горбе потерь». Следует отметить, что механизмов подавления пиков К фотопотерь Ge в таких спектрометрах не предусмотрено.

Форсвич ($\Delta E-E$) детекторы, например, [260, 413, 414] представляют собой комбинированные двухслойные детекторы, состоящие из первого тонкого детектора и детектора полного поглощения (второго). Они позволяют разделять регистрацию гамма излучения и излучения заряженных частиц, например [415], и существенно снизить фон от регистрации гамма излучения. Подобный детектор ионизирующего излучения, состоящий из двух планарных диодов, описан в патенте [416]. При этом ближний к источнику излучения планарный детектор

предназначен для детектирования альфа излучения и низкоэнергетического гамма излучения.

В работе [417] рассмотрено моделирование методом Монте-Карло Si/CdTe полупроводниковой комптоновской камеры, служащей для исследования процессов комптоновского рассеяния в гамма области излучения и состоящая из набора Si детекторов, расположенных друг за другом и CdTe детекторов, расположенных по краям и с дальней стороны.

Применение двухслойного комбинированного детектора [418] с использованием органического и неорганического сцинтиллятора также позволяет разделять регистрацию гамма излучения и излучения заряженных частиц.

В случае больших интенсивностей излучения детекторы могут работать в токовых режимах, когда каждый импульс излучения не может быть различен. В подобном случае дополнительная информация о спектральном составе излучения может быть получена с использованием набора фильтров из фольги, устанавливаемых перед детекторами [419].

В радиометрии проблемой при регистрации гамма излучения с различной энергией является разная эффективность регистрации в разных диапазонах энергии. В работе [420] перед ZnSe детектором был установлен Pb-Cu фильтр, позволивший уменьшить нелинейность выхода с 4 раз до 8%.

1.7.8. Другие типы детекторов

Детекторы излучений на основе газовых электронных умножителей описаны, например, в работах [421, 422].

Обзор координатно-чувствительных детекторов приведен, например, в работе [4]. Следует отметить, что в большинстве работ, посвященных координатно-чувствительным детекторам, процессы переноса энергии в процессе регистрации не рассматриваются.

При регистрации пространственных характеристик рентгеновского и гамма излучения высокой интенсивности в ряде случаев используются ФЭУ на микроканальных пластинах, например [423, 424].

Спектрограф мягкого рентгеновского излучения с регистрацией на ПЗС матрице рассмотрен, например, в работе [425].

Микростриповые газовые камеры, представляющие собой газовую камеру с дрейфовым электродом и набором катодов и анодов на сапфировой подложке рассмотрены в работе [426].

Многопроволочные пропорциональные камеры описаны, например, в работах [427, 428].

Позиционно-чувствительные детекторы рентгеновского излучения с резистивным и полосковым анодами описаны в работах [429...432].

В случае использования сверхпроводника для регистрации фотонов к регистрации приводит разбивание Куперовских пар и возбуждение квазичастиц – фононов [433...435]. Энергетическое разрешение при таком методе регистрации получается в несколько раз лучше, чем при генерации электронно-дырочных пар. Недостатком подобных детекторов является необходимость охлаждения в гелиевом криостате.

1.8. Способы обработки спектров и рентгенофлуоресцентного анализа

1.8.1. Методы обработки спектров

Поскольку информацию о сигнале несет именно интенсивность рентгеноспектральной линии, ее необходимо предварительно оценить тем или иным способом, за вычетом фона.

Обычно интенсивность спектральной линии оценивают либо по амплитуде сигнала, либо по площади сигнала между некоторыми значениями энергий либо длин волн. В ряде случаев, когда можно измерить интенсивность сигнала вдали от спектральной линии (например, в случае спектрометрического канала с гониометром), ее можно принять за фон и вычесть из интенсивности сигнала.

В случае многоканального спектрометра с фиксировано настроенными каналами (квантометра) функцию выбора импульсов с амплитудами между минимальной и максимальной выполняет амплитудный дискриминатор (см. также рис. 1.1). Также следует

отметить, что при применении фиксировано настроенного канала измерение фона рядом с линией невозможно.

В случае наличия рядом с измеряемой линией дополнительной мешающей линии измерение фона рядом с линией становится уже далеко не тривиальной задачей. Обычным критерием разрешимости спектральных линий, является критерий Релея, см. например, [436]. При использовании такого критерия линии являются разрешимыми «на глаз», если расстояние между их максимумами больше, чем ширина линии на полувысоте.

То, что разрешающую способность измерительного прибора можно повысить при последующей обработке результатов, было показано еще Релеем [437], при этом предел, до которого можно пойти при улучшении разрешения, существенно зависит от точности измерений и уровня шумов.

В ряде работ рассматривается решение обратных задач по расшифровке спектров с получением сверхразрешения (существенного улучшения разрешения с помощью математических методов) [438...440]. Естественно, что при использовании таких методов необходим компьютер. Обзорной работой по реконструкции изображения (решению обратных задач) может считаться сборник [441].

Во многих задачах из различных областей науки [441] (в том числе и спектроскопии при анализе спектров сигнала) требуется решить линейное интегральное уравнение типа

$$\int_s k(x,s) \cdot u(s) ds = g(x), \quad (1.90)$$

где $g(x)$ – некая наблюдаемая функция, $k(x,s)$ – известное ядро, $u(s)$ – неизвестная функция, которую надо определить.

Уравнение (1.90) является интегральным уравнением Фредгольма 2 рода. В общем случае это уравнение некорректно в том смысле, что малые возмущения наблюдаемого сигнала g приводят к недопустимо большому изменению решения. Нахождение подходящего приближенного решения такого уравнения обычно требует компромисса между требованиями точности и устойчивости такого решения.

Для решения подобного уравнения необходимо знать ядро этого уравнения (оно же – «аппаратная функция» в оптике, оно же – «функция отклика детектора» в рамках восстановления интенсивностей линии в энергодисперсионном флуоресцентном анализе).

Основными применяемыми критериями при решении подобных задач являются принципы максимального правдоподобия и максимальной энтропии.

Принцип максимального правдоподобия (см, например, [442]) заключается в том, что наилучшим описанием явления будет то, которое дает наибольшую вероятность получить в результате измерения именно те значения, которые были фактически получены.

Принцип максимальной энтропии заключается в том, что при восстановлении сигнала каждому объекту приписывают некоторую априорную вероятность и в качестве оценки берут ту оценку, вероятность реализации которой максимальна, см., например [437, 443, 444].

В работе [445]. применительно к анализу с волновой дисперсией показано, что форма наблюдаемой линии является сверткой действительной физической линии и инструментальной функции отклика. Ассиметричная форма может быть описана псевдо – Voigt профилем и подогнана методом наименьших квадратов с экспериментально наблюдаемым спектром.

При восстановлении сигналов существует предел улучшения разрешения (сверхразрешения) [446], при этом предельное сверхразрешение логарифмически зависит от соотношения сигнал/шум и может быть вычислено по теореме Шеннона о максимальной скорости передачи информации через канал связи с шумом, а также то, что алгоритм восстановления, основанный на методе максимального правдоподобия, практически достигает предела сверхразрешения.

Подгонка формы линий в энергодисперсионном анализе чаще всего проводится как с помощью гауссового распределения, так и с помощью комбинации (свертки) функции Лоренца и Гаусса (Voigt peak), см. например, [447, 448], которая лучше описывает края спектральной

линии, имеющие лоренцевскую форму, причем лоренцевскую форму линии приписывают спектральным линиям, а гауссово уширение - детектору.

При обычном способе (например, [449]) определения интенсивности спектральной линии интенсивность линии определяют по площади пика полного поглощения линии в детекторе. Недостатком такого способа является то, что вероятность регистрации детектором линии в пике полного поглощения в высокоэнергетической рентгеновской и гамма области мала, что обуславливает большую величину статистической погрешности, связанной с флуктуациями счета импульсов.

Формирование антикомптоновских гамма-спектров методом квазидифференцирования рассмотрено в работе [450], в которой делается попытка автоматического учета фона в области антикомптоновского спектра («горба потерь» в терминах данной работы). Методика автоматической идентификации радионуклеидов по их гамма спектрам рассмотрена, например, в работе [451].

В ряде случаев при большой толщине мертвого слоя детекторов и, соответственно, большой вероятности регистрации в низкоэнергетических хвостах линий, требуется коррекция измеряемого спектра [452].

1.8.2. Способы анализа

В рентгенофлуоресцентном анализе необходим расчет содержания определяемого элемента по измеряемым интенсивностям спектральных линий. Основными этапами рентгенофлуоресцентного анализа являются: приготовление образцов сравнения, отбор проб для анализа, подготовка проб к анализу, измерение интенсивностей спектральных линий, расчет концентраций определяемых элементов на основе измеренных интенсивностей. На каждом из приведенных этапов существуют свои погрешности. Классификация способов анализа приведена, например, в работах [241, 245].

При такой классификации если при нахождении концентрации элемента интенсивность его аналитической линии сравнивают с

интенсивностью линии от независимого излучателя, то считают, что анализ выполняется способом внешнего стандарта. Если же интенсивность аналитической линии сравнивается с интенсивностью другой (других) линий от этого же излучателя, то считается, что анализ выполняется способом внутреннего стандарта. Наиболее распространенными способами согласно указанной классификации являются прямой способ внешнего стандарта, способ внешнего стандарта с поправками на поглощение, способ разбавления проб нейтральной средой, анализ с использованием «тонких» излучателей (в смысле ненасыщенного образца), способ калибровки, в т.ч. полуэмпирические способы и способ фундаментальных параметров, способ добавок, способ внутреннего стандарта, способ стандарта – фона.

Одним из способов рентгенофлуоресцентного анализа, широко распространенного в последнее время в связи с распространением ЭВМ, является способ (метод – *fundamental coefficient method*) фундаментальных параметров. Способ фундаментальных параметров описан как метод решения обратной задачи итерационным методом на ЭВМ, например, в работах [453...455]. Считается, что точность способа ограничена только точностью знаний о фундаментальных параметрах (сечения взаимодействия, спектральный состав первичного излучения и т.п.). Способ позволяет учитывать многократные взаимодействия в образце, например, довозбуждение флуоресцентных линий фото и Оже электронами [456].

В недавней работе [457] рассмотрена возможность расчета регистрируемых спектров, однако особенности, возникающие при детектировании, сводятся лишь к пикам вылета, плеча, формируемого в области энергий ниже регистрируемой линии за счет некачественной работы схемы детектора. При этом особенностями спектра, возникающими из-за комптоновского рассеяния в детекторе, очевидно, пренебрегается.

Следует отметить, что неточности в определении фона вблизи со спектральной линией определяют неточности в определении

интенсивностей линий, а, следовательно, и в определении концентраций при использовании любого из способов анализа.

1.9. Цели и задачи работы.

Поскольку **целью работы** является разработка моделей, пригодных для описания формирования сигнала и фона в рентгенофлуоресцентном анализе на основе комплексного рассмотрения процессов взаимодействия излучения с веществом на всех стадиях преобразования излучения в сигнал, регистрируемый аппаратурой, а также разработка новых решений, позволяющих прогнозировать соотношение сигнал/фон в конкретных условиях эксперимента и улучшить это соотношение, подавляя фоновую составляющую регистрируемого сигнала, приведенный обзор позволяет сформулировать следующие основные **задачи**:

1. Поскольку потери энергии (как радиационные, так и вследствие переноса электронов) при регистрации фотона приводят к усложнению формы функции отклика детектора, следует изучить подобные эффекты. Дополнительно полученной информацией будут пространственные характеристики зоны поглощения излучения в детекторах, а также зависимость параметров функции отклика детекторов от геометрии детектора.

2. Для подтверждения работоспособности модели следует сопоставить расчетные и экспериментальные данные спектров сигнала и фона для энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа с радиоизотопным возбуждением.

3. Поскольку в современных установках для энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа геометрия системы источник излучения – образец – детектор не может быть описана только одним углом рассеяния, следует оценить влияние геометрии спектрометра на форму энергетического распределения пика комптоновского рассеяния и ввести соответствующие поправки в расчетные формулы.

4. Энергодисперсионный рентгенофлуоресцентный анализ с радиоизотопным возбуждением является индикатором того, насколько представленная модель формирования сигнала и фона соответствует

действительности. Необходимо сопоставить расчетные и экспериментальные данные для энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа с радиоизотопным возбуждением, а также провести исследования контрастности отдельных линий при использовании рентгеновской трубки для возбуждения флуоресценции образца.

5. В результате проработки модели спектрометра оказалось возможным предложить способы увеличения соотношения сигнал/фон в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе путем подбора оптимальных условий возбуждения и регистрации сигнала, таких как источник возбуждающего излучения, толщина и материал детектора;

6. На основании модели переноса энергии в детекторе оказалось возможным предложить двухслойный детектор рентгеновского излучения с первым слоем из Si, вторым слоем – из Ge, AsGa либо CdTe, рассчитать оптимальные параметры кремниевого слоя такого детектора, изучить условия в энергодисперсионном спектрометре, при которых можно рассчитывать на повышение контрастности при измерениях;

7. Предварительно проведенные исследования фона в каналах по рентгенооптическим схемам Соллера и Иоганссона дают основание для предположения о разной значимости отдельных процессов формирования фона в аппаратуре. Поэтому следовало изучить вклады составляющих фона в каналах спектрометра, выполненных по рентгенооптическим схемам Соллера и Иоганссона и с учетом этого предложить способы, позволяющие уменьшить величину фона в аппаратуре с волновой дисперсией.

8. Для экспериментальной проверки модели возбуждения флуоресценции элементов с малыми атомными номерами необходимо учесть влияние фона, обусловленного вторыми порядками отражения на псевдокристаллах.

ГЛАВА 2

Изучение процессов переноса энергии в детекторах

Целью данной главы является комплексный анализ особенностей функции отклика детектора, возникающих как при переносе и поглощении излучения в детекторе, так и при переносе электронов, возникающих в детекторе, поскольку данные особенности определяют предельные характеристики реальных детекторов излучения.

2.1. Модель взаимодействия излучения с веществом детектора.

Излучение, сформировавшееся в результате взаимодействия первичного излучения с образцом, попадает в детектор рентгеновского излучения. В детекторе происходят те же самые процессы, которые происходят и в веществе образца (фотопоглощение, когерентное и некогерентное рассеяние). В результате подобных взаимодействий фотон, попавший в детектор с энергией E_{det} может быть полностью поглощен, преобразовавшись в поток электронов, которые в дальнейшем дадут импульс тока с зарядом $Q_{det}=C \cdot E_{det}$, (C - коэффициент пропорциональности) и будут зарегистрированы аппаратурой как импульс напряжения, соответствующий E_{det} . В то же время фотон может быть рассеян веществом детектора, и покинуть его с энергией E_{det_out} . Тогда оставшиеся в детекторе свободные электроны, будут зарегистрированы как фотон с энергией

$$E_{det}' = E_{det} - E_{det_out}. \quad (2.1)$$

В этом случае при регистрации образуется пик потерь в результате фотопоглощения с последующей флуоресценцией и «горб потерь» в результате комптоновского рассеяния.

При каждом событии, при котором появляется электрон с высокой энергией (фотопоглощение, безрадиационный (Оже) переход,

комптоновское рассеяние), просчитывается вероятность выхода электрона за пределы чувствительной области детектора. Этот процесс для высококачественных детекторов является конкурирующим с процессом неполного сбора заряда.

Формула (2.1) также не является строгим законом – вблизи входной поверхности детектора заряд до некоторой глубины (глубина мертвого слоя) будет собираться не полностью, из-за более интенсивной, чем в основном объеме детектора, рекомбинации носителей на центрах рекомбинации и захвата заряда ловушками, связанными с приповерхностными дефектами полупроводника. При таких процессах количество собранного заряда электронов и дырок может быть разным [259]. Из-за неполного сбора заряда при регистрации фотона внутри мертвого слоя фотон будет регистрироваться уже с энергией

$$E_{дет}'' = (E_{дет} - E_{дет_out}) * p_{зар}(h), \quad (2.2)$$

где $p_{зар}(h)$ – относительное количество заряда, собранного с глубины детектора h при событиях фотопоглощения и комптоновского рассеяния. При моделировании эта функция должна изменяться от 0 вблизи поверхности детектора до 1 внутри основного объема детектора вдали от поверхности. В данной работе использовалось несколько моделей функции (2.2):

$$p_{зар}(h) = \begin{cases} h / dead_layer, & h < dead_layer \\ 1, & h > dead_layer \end{cases} \quad (2.3)$$

$$p_{зар}(h) = 1 + \Delta - \exp(-h / dead_layer'), \quad (2.4)$$

где $dead_layer$ – толщина мертвого слоя. Функция (2.3), по всей видимости, является наиболее простой функцией, кроме того, по всей видимости, является некоторым пределом, обусловленным технологией обработки поверхности детектора.

Функция (2.4) более корректно описывает экспериментальные данные работ [330, 383]. Другие виды функций также являются

приемлемыми для поиска наиболее пригодной для аппроксимации реально наблюдаемой функции отклика детектора, что будет обсуждаться в рамках анализа результатов расчетов.

Как уже было замечено в главе 1, различные технологии травления поверхности заготовки будущего детектора дают разную форму электронного хвоста потерь, связанного с неполным сбором заряда [339], и, что соответствует разному характеру поведения функции $p_{зар}(h)$. Эффективно собирать заряд из различных областей детектора [344] можно с использованием DSP технологий. Следует отметить, что для целей данной работы анализ функции $p_{зар}(h)$ нужен только в целях оценки толщины мертвого слоя «высококачественных» (high quality) детекторов, например [353]. Для таких детекторов фон в районе хвостов неполного сбора заряда обусловлен в основном потерей электронов высоких энергий (например, [365]).

Для численной оценки результатов многократных взаимодействий излучения с веществом детектора применен метод Монте-Карло, который позволяет учесть геометрические особенности детектора и возможность многократных взаимодействий. При большом количестве испытаний (10^6) точность этого метода становится вполне приемлемой в целях оценки свойств детектора.

Вероятности взаимодействия фотона с веществом детектора описывались следующими формулами:

Вероятность фотопоглощения dP_{τ} фотона с энергией E_0 К-оболочкой

$$dP_{\tau} = \tau_K(E_0) \cdot \rho \cdot dl, \quad (2.5)$$

где dl – длина пробега фотона, ρ - плотность материала детектора, $\tau_K(E_0)$ - массовый коэффициент фотопоглощения фотона К оболочкой вещества детектора.

Выход рентгеновской флуоресценции в К серии

$$dP(E_0 \rightarrow E_{K\alpha}) = dP_{\tau_K} \cdot \omega_K, \quad (2.6)$$

ω_K – выход флуоресценции в К серии,

Фотопоглощение L - оболочкой.

$$dP_{\tau_L} = \tau_L(E_0) \cdot \rho \cdot dl, \quad (2.7)$$

где $\tau_L(E_0)$ - массовый коэффициент фотопоглощения фотона L оболочкой вещества детектора.

Вероятность когерентного рассеяния фотона в веществе детектора на угол Θ при длине пробега dl :

$$\frac{d^2 P_{coh}(\Theta)}{d\Theta \cdot dl} = \rho \frac{N_A}{A} \cdot \frac{d\sigma_{el_coh}(\Theta)}{d\Omega} \cdot 2 \cdot \pi \cdot \sin(\Theta) \cdot F^2_{at_coh}, \quad (2.8)$$

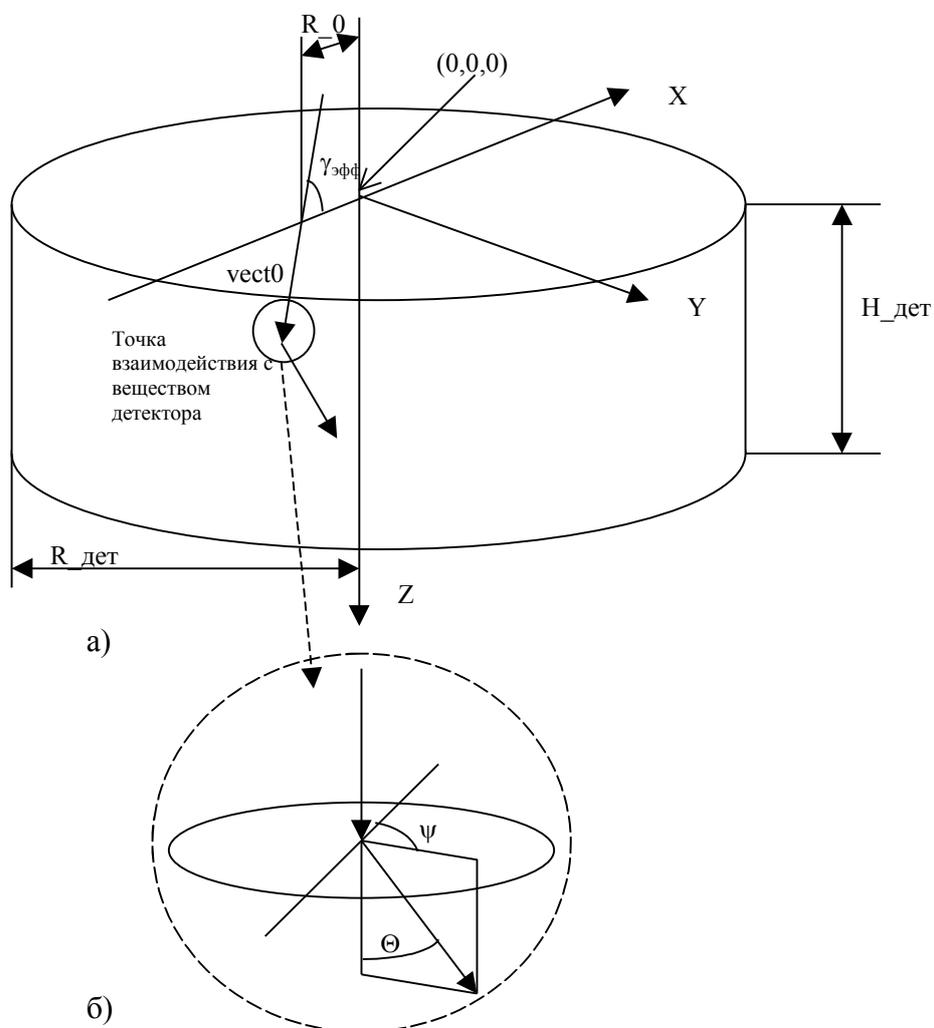


Рис. 2.1. Моделирование траектории фотона в детекторе.

а) геометрическая модель детектора.

б) углы взаимодействия.

Вероятность некогерентного (комптоновского) рассеяния описывалась формулами:

$$\frac{d^2 P_{comp}(E_0 \rightarrow E(\Theta))}{d\Theta \cdot dl} = \rho \frac{N_A}{A} \cdot \frac{d\sigma_a^{incoh}(\Theta)}{d\Theta}, \quad (2.9)$$

где атомное сечение когерентного рассеяния описывалось формулами (1.38) либо (1.41). Различия между результатами, полученными с помощью этих формул, будут обсуждаться ниже.

Проанализируем траекторию фотона в детекторе (см. рис. 2.1). Пусть рентгеновский фотон с энергией $E_{ph}=E_{det}$ попадает в детектор в точке $\vec{r}_0 = (R_0, 0, 0)$, под эффективным углом, описываемым вектором $\overline{vect} = \overline{vect}_0$, (\overline{vect} описывает направление полета фотона и нормирован на 1). Перемещение фотона рассчитывается как $\Delta \vec{r} = 0.1 \cdot l(E_{ph}) \cdot \overline{vect}$, где $l(E_{ph})$ – средняя длина пробега фотона между взаимодействиями, равная $l/(\rho^*(\sigma_{\mu_{coh}} + \sigma_{\mu_{comp}} + \tau))$. У краев области детектирования перемещение фотона уменьшается до одной сотой от толщины мертвого слоя. Рассчитываются вероятности взаимодействий, равные соответственно $p_i = \rho^* |\Delta r| \mu_i$. Производится розыгрыш взаимодействия, т.е. углов Θ и ψ . При анализе процесса фотопоглощения учитывается выход флуоресценции [94]. Окончанием моделирования будем считать выход фотона с энергией E_{det_out} за пределы детектора или фотопоглощение фотона с энергией, меньшей энергии К- края поглощения для Si, Ar, или меньшей L края поглощения для Ge, Xe, I (для сцинтиллятора NaI(Tl)). Также окончанием моделирования пролета фотона является ситуация, когда в результате фотопоглощения флуоресценции не возникло (Оже переход).

При каждом событии, при котором появляется электрон с высокой энергией (фотопоглощение, безрадиационный (Оже) переход,

комптоновское рассеяние), просчитывается вероятность выхода электрона за пределы чувствительной области детектора.

Рассмотрим процесс выхода электрона с высокой энергией E_0 , возникшего в веществе детектора, за пределы чувствительного объема детектора. Первоначальное направление электрона будем считать равновероятным из-за достаточно быстрой хаотизации направления вылета электрона в рассматриваемой области энергий.

Пусть электрон выходит из детектора с глубины t (рис. 2.2). Траекторию будем считать прямолинейной. Среднюю энергию электронов, прошедших сквозь слой r плотностью ρ примем согласно приближению Томсона – Уиддингтона [27]

$$E_{el}(E_0, \rho, r) = \sqrt{E_0^2 - c_{tu} \cdot \rho \cdot r}; \quad c_{tu} \approx 3 \cdot 10^5 \text{ [кэВ}^2 \cdot \text{см}^2/\text{г]} \quad (2.10)$$

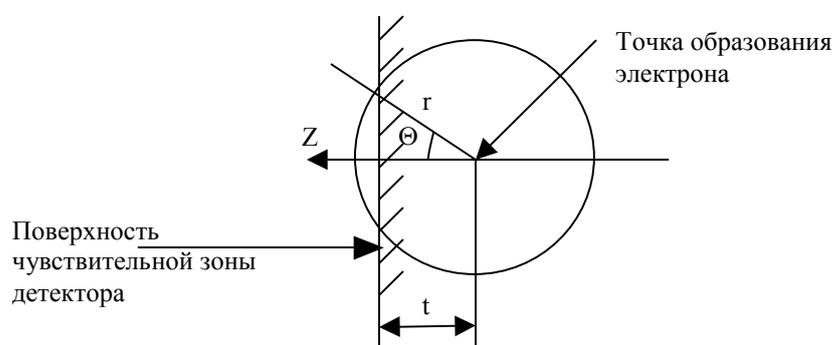


Рис. 2.2. К расчету вероятности выхода электрона из чувствительной области детектора.

Тогда энергетическое распределение электронов будет

$$\frac{dn}{dE_{el}} = k \frac{dn}{d\Theta} \cdot \frac{1}{\frac{dE_{el}}{d\Theta}}, \quad (2.11)$$

$$\text{где } \frac{dn}{d\Theta} = \frac{1}{2} \sin(\Theta),$$

k – поправка на анизотропность потока электронов, взятая согласно работам [458, 365] равной 0.5 для К-фотоэлектронов, 1 – для L фотоэлектронов и Оже электронов.

Неполный сбор заряда вблизи поверхности учитывался с помощью формулы (2.2).

Поскольку существует неопределенность в коэффициентах комптоновского и когерентного рассеяния [79, 105], модель для Si и Ge детекторов корректируется по экспериментальным данным, например [319, 459] путем изменения коэффициентов при σ_{μ_coh} и σ_{μ_comp} в пределах неопределенности данных об этих сечениях. Количество анализируемых событий равно 10^6 для каждой из энергий влетающего фотона в диапазоне энергий 1-100 кэВ с шагом 0.1 кэВ. Полученный результат корректируется на поглощение попадающего в детектор излучения во входном бериллиевом окне детектора (в нашем случае $d_{Be} = 0.254$ мм для всех расчетов данной работы).

Так как результатам моделирования по методу Монте-Карло всегда присуща статистическая погрешность, то целесообразно ввести дополнительное сглаживание полученных результатов. Кроме того, при сглаживании данных можно учесть как энергетическое разрешение конкретного детектора, так и уширение измеряемых линий с ростом энергии фотона. Сглаживание ведется с окном, соответствующим энергетическому разрешению детектора, наблюдаемому экспериментально на линиях флуоресценции.

2.2. Расчет параметров функции отклика детекторов.

2.2.1. Расчет параметров функции отклика детектора, обусловленных радиационным и электронным переносом.

Функция отклика детектора $K_{det}(E_{det}, E)$ есть вероятность регистрации сигнала с амплитудой, соответствующей энергии E при попадании в детектор фотона с энергией E_{det} .

На рис. 2.3а показана структура функции отклика Si детектора. В случае полного поглощения энергии фотона в детекторе он будет зарегистрирован в пике полного поглощения с энергией E_0 , в случае фотопоглощения с последующим выходом флуоресцентного фотона Si – в “пике К фотопотерь” с энергией $E_0 - E_{Ka}$, в случае выхода электрона высокой энергии из чувствительной области детектора или неполного сбора заряда – в «хвосте» с энергией от 0 до E_0 , в случае комптоновского рассеяния с выходом рассеянного фотона из детектора – в «горбе» потерь с энергией от 0 до максимальной энергии электронов отдачи $E_{комп_эл_max}(E_0)$.

Структура функции отклика Ge детектора (рис 2.3б) несколько отличается от функции отклика Si детектора:

- в области энергий фотонов ниже К края поглощения Ge, примерно до 5 кэВ, существенным является L пик фотопотерь, содержащий компоненты, соответствующие L излучению Ge;

- в области энергий фотонов выше К края поглощения Ge очень большая вероятность выхода флуоресцентного фотона Ge из детектора, вследствие большего, чем у Si, выхода флуоресценции. Это обуславливает очень большую вероятность (порядка 20%) регистрации фотона в пике К фотопотерь.

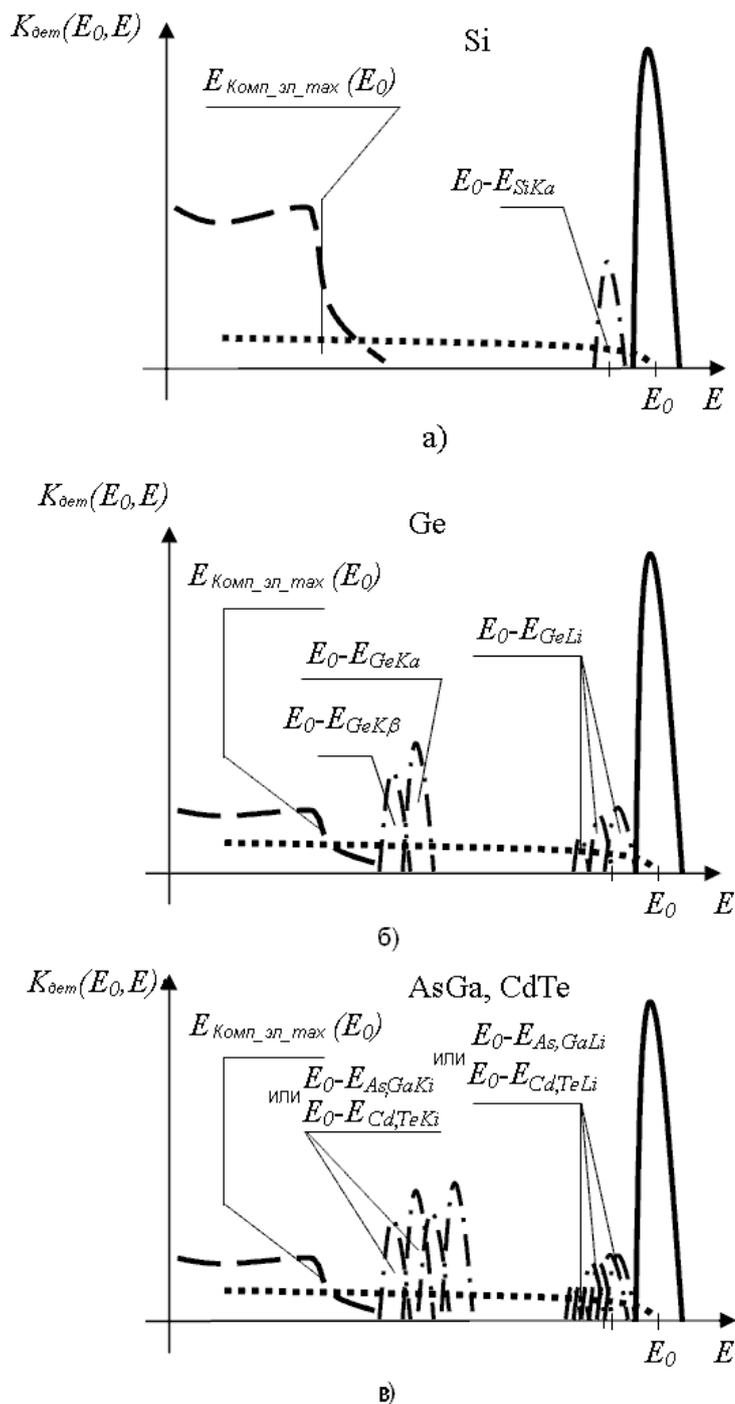


Рис. 2.3 Структура функции отклика детектора

Пик полного поглощения (непрерывная линия), пик К-фотопотерь для Si и К- и L-фотопотерь для Ge, AsGa, CdTe детекторов (штрихпунктирная линия), горб потерь (пунктирная линия), электронный хвост потерь (точечная линия).

а) Si детектор, б) Ge детектор, в) AsGa или CdTe детектор.

При увеличении энергии фотона вероятность регистрации в пике К фотопотерь монотонно убывает, однако до энергий порядка 50-60 кэВ составляет не менее 1%. Следствием этого в спектрах EDXRF будут «линии», отличающиеся от ярких линий спектра на энергию K_{α} и K_{β} флуоресцентных квантов Ge;

- вероятность регистрации в «горбе потерь» существенно меньше таковой для Si детектора.

Структура функции отклика AsGa и CdTe детектора (рис 2.3в) отличается от структуры функции отклика Ge детектора в основном удвоенным количеством пиков фотопотерь, соответствующих как As, так и Ga. Также, подобно Ge детектору, для AsGa детектора вероятность регистрации в «горбе потерь» существенно меньше, чем для Si детектора.

2.2.2. Учет неполного сбора заряда в мертвом слое детектора.

На рис. 2.4 показана более детальная структура функции отклика Si детектора $K_{det}(E_0, E)$, чем на рис. 2.3. Отличием является то, что при данном рассмотрении учитывается дополнительное увеличение фона в области, меньшей, чем энергия пика полного поглощения вследствие неполного сбора заряда. В случае регистрации фотона внутри мертвого слоя детектора заряд собирается не полностью и в дополнение к хвосту потерь, обусловленному выходом электронов, добавляется хвост, обусловленный неполным сбором заряда детектора.

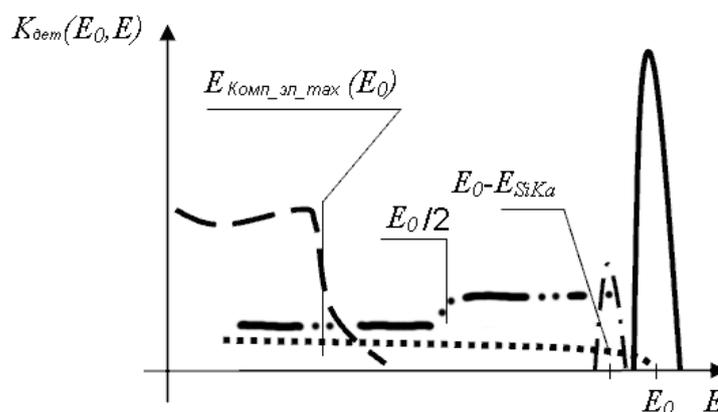


Рис. 2.4. Структура функции отклика Si детектора с учетом неполного сбора заряда

Пик полного поглощения (непрерывная линия), пик К-фотопотерь для Si детектора (штрих-пунктирная линия), горб потерь (пунктирная линия), электронный хвост потерь (точечная линия), хвост от неполного сбора заряда (линия штрих – две точки).

Хвост, обусловленный неполным сбором заряда, может иметь скачек на половине энергии регистрируемого излучения, обусловленный разной толщиной мертвого слоя для электронов и дырок в том случае, если в приповерхностном слое по каким-либо технологическим причинам, связанным с обработкой поверхности, вероятности сбора заряда разных знаков существенно отличаются.

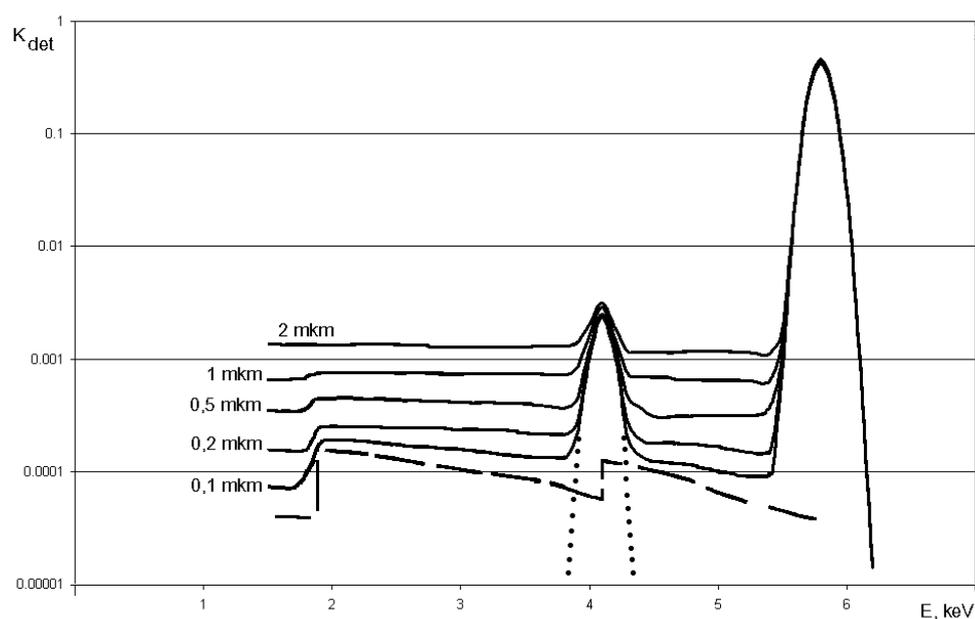
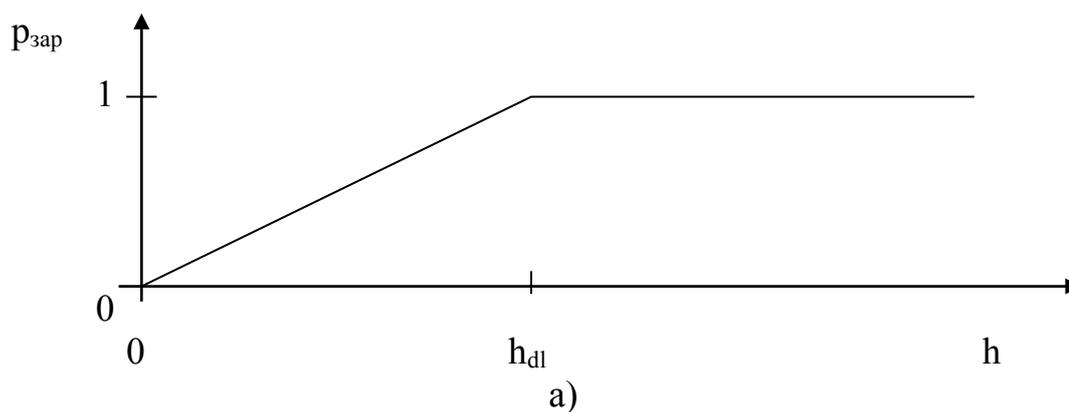
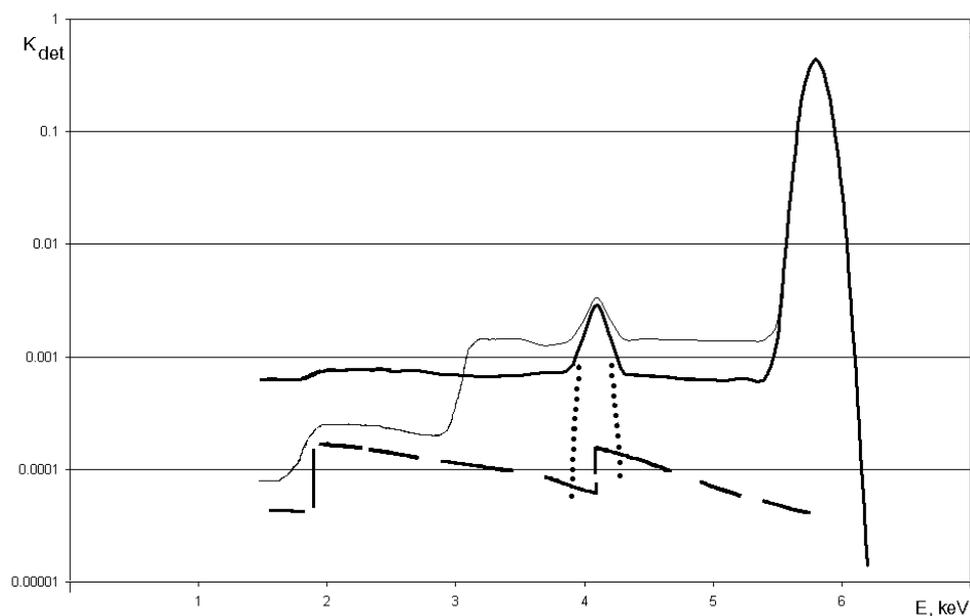
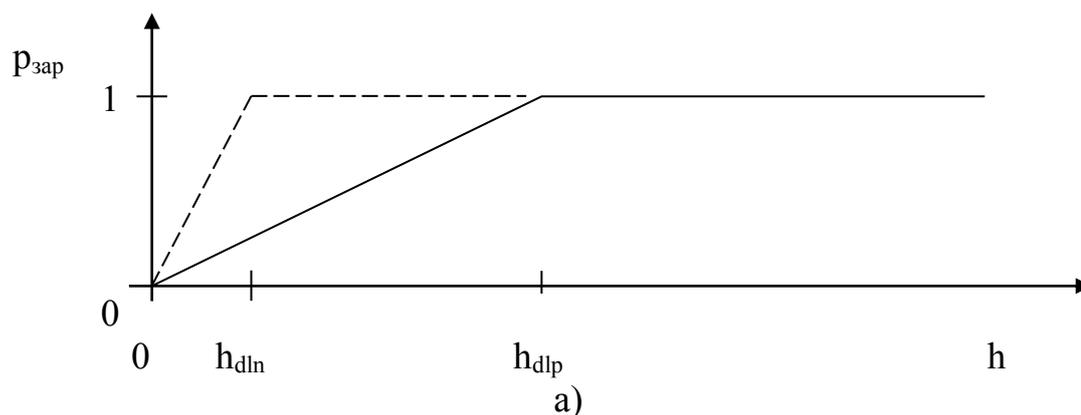


Рис. 2.5а) Модельная зависимость эффективности сбора заряда $p_{зар}$ (формула 2.3) от глубины регистрации фотона h при толщине мертвого слоя детектора h_{dl} при одинаковой эффективности сбора зарядов обеих знаков.

б) Расчетная функция отклика детектора при энергии фотонов 5,8 кэВ и толщине мертвого слоя детектора 0,1 – 2 мкм (сплошные линии). Фон, обусловленный выходом электронов высоких энергий (пунктирная линия) и регистрацией фотонов в пике фотопотерь (точечная линия)

На рис. 2.5а представлена примененная функция $p_{зар}$ сбора заряда (по формуле 2.3) внутри мертвого слоя толщиной h_{dl} в зависимости от глубины h взаимодействия, в результате которого появились электроны высоких энергий, при дальнейшем торможении которых и образуется заряд, в идеале пропорциональный энергии фотона. При подобной модели сбора заряда, если фотон регистрируется внутри мертвого слоя детектора толщиной h_{dl} , то заряд будет собран лишь частично по сравнению с тем, когда фотон регистрируется в основном объеме детектора (вдали от входной поверхности). Следствием этого процесса будет дополнительный хвост функции отклика с энергией, меньшей, чем энергия пика полного поглощения, налагающийся на хвост потерь, обусловленный выходом электронов высоких энергий за пределы чувствительной области детектора.

На рис. 2.5б представлена расчетная функция отклика детектора при энергии фотонов 5,8 кэВ при толщинах мертвого слоя 0,1-2 мкм и одинаковой эффективности сбора зарядов разных знаков. Из рисунка видно, что с уменьшением толщины мертвого слоя фон, в области энергий меньшей энергии регистрируемой линии, обусловленный регистрацией фотона в хвостах, обусловленных выходом электронов высоких энергий и неполным сбором заряда уменьшается, и при толщине мертвого слоя 0,1 мкм приближается к фону, обусловленному выходом электронов высоких энергий. По всей видимости, эта толщина мертвого слоя и является в настоящее время критерием «высококачественного» детектора и системы сбора информации спектрометра.



б)

Рис. 2.6. Расчетная функция отклика детектора

а) Модельная зависимость эффективности сбора заряда $p_{зар}$ от глубины регистрации фотона h при толщинах мертвых слоев детектора h_{dln} и h_{dlp} при существенно разной эффективности сбора зарядов обеих знаков.

б) Расчетная функция отклика детектора при энергии фотонов 5,8 кэВ и толщине мертвого слоя детектора 1 мкм и одинаковой толщине мертвого слоя для электронов и дырок (сплошная толстая линии) и при толщине мертвого слоя 0,1 мкм для носителей первого знака и 2 мкм для носителей второго знака (сплошная тонкая линия). Фон, обусловленный выходом электронов высоких энергий (пунктирная линия) и регистрацией фотонов в пике фотопотерь (точечная линия)

На рис. 2.6а представлены функции сбора заряда для случая, когда толщина мертвого слоя является существенно разной для электронов и дырок, например, в случае разного количества ловушек одного и другого типа в приповерхностном слое. Для этого случая на рис 2.6б приведена рассчитанная функция отклика, для расчета которой приняты толщины мертвых слоев 0,1 и 2 мкм для носителей заряда разных знаков соответственно. В таком случае фон функции отклика детектора будет иметь скачок на половине энергии регистрируемого излучения.

На рис. 2.7а приведено сравнение зависимости эффективности сбора заряда $p_{зар}$ от глубины регистрации фотона h по формулам (2.3) и (2.4) при толщине мертвого слоя 0,2 мкм, а на рис. 2.7б – соответствующие функции отклика детектора. Очевидно, что экспоненциальный характер малых потерь заряда по формуле (2.4) в зависимости от глубины его сбора соответствует малым потерям энергии, что обуславливает более высокий уровень фона вблизи регистрируемой линии.

Если сравнивать данные расчетов, приведенных на рис. 2.7 с данными, приведенными в статье [339] и на рис. 1.12, то очевидно, что подбором технологических процессов можно максимально приблизить эффективность сбора заряда к формуле (2.3), убрав дополнительный хвост, обусловленный малыми потерями энергии.

Соответственно, выполнив на кремниевой пластине, предназначенной для производства микроэлектроники, несколько областей, могущих служить детекторами, подключив их к предусилителям, и облучив указанные области фотонами с энергией в несколько кэВ, можно получить эффективный способ оценки количества приповерхностных дефектов, влияющих на дальнейшее качество изготавливаемой электроники.

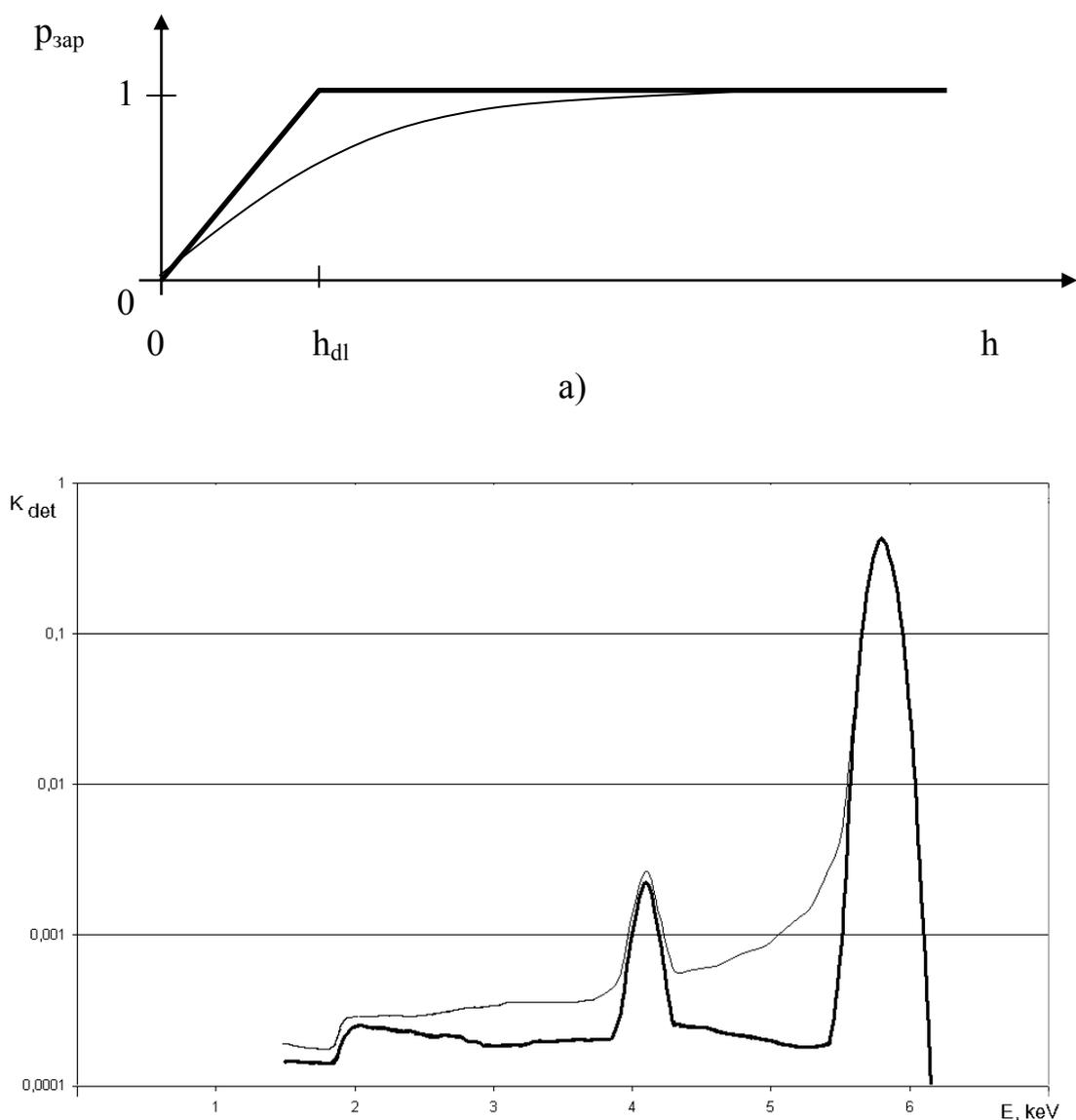


Рис. 2.7. Расчетная функция отклика детектора

а) Модельная зависимость эффективности сбора заряда $p_{\text{зар}}$ от глубины регистрации фотона h по формулам (2.3) – толстая линия и (2.4) – тонкая линия.

б) Расчетная функция отклика детектора при энергии фотонов 5,8 кэВ и зависимость эффективности сбора заряда $p_{\text{зар}}$ по формулам (2.3) – толстая линия и (2.4) – тонкая линия при толщине мертвого слоя 0,2 мкм.

2.2.3. Расчет вероятностей регистрации фотона в различных частях функции отклика детектора.

Судя по современным работам, например [338, 339], на сегодняшний день уже достигнут уровень толщины мертвого слоя порядка 0,1-0,2 мкм. При такой толщине мертвого слоя уровень фона, обусловленный неполным сбором заряда, становится соизмеримым с уровнем фона, обусловленным выходом электронов высоких энергий. Соответственно, на сегодняшний день современные высококачественные детекторы подошли к уровню, когда фон становится обусловленным не только неполным сбором заряда, но и другими процессами переноса излучения в детекторе.

На рис. 2.8 (для справки) приведена зависимость массовых коэффициентов фотопоглощения [81] и комптоновского рассеяния [132] от энергии рентгеновского излучения для рассматриваемых веществ детектора. Из рисунков видно, что сечение фотопоглощения быстро (примерно как $1/E^3$) падает с ростом энергии, а сечение комптоновского рассеяния меняется очень слабо (для Ge детектора и сцинтиллятора NaI(Tl) область рассматриваемых энергий расширена до 1000 кэВ, что будет использоваться для последующих оценок).

На рис. 2.9 сопоставлены расчетная эффективность детекторов (вероятность полного поглощения энергии фотона), вероятности регистрации фотона в «хвосте потерь», связанном с дрейфом электронов высоких энергий, в «пике К-фотопотерь» и в «горбе потерь», связанном с комптоновским рассеянием в детекторе.

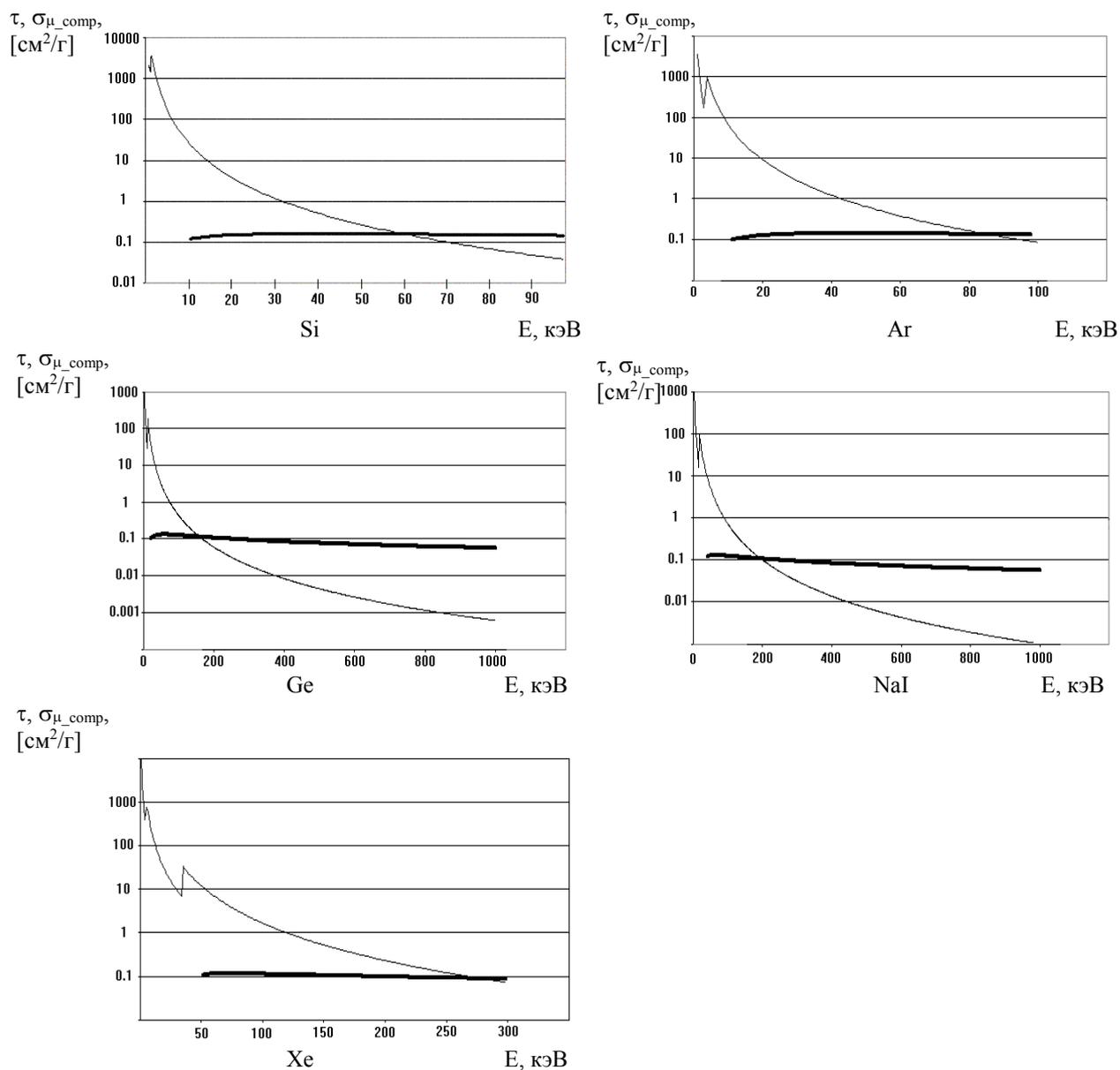


Рис. 2.8. Зависимость массовых коэффициентов фотопоглощения (тонкая линия), и комптоновского рассеяния (толстая линия) в зависимости от энергии излучения для некоторых материалов, применяемых для изготовления чувствительной области детектора.

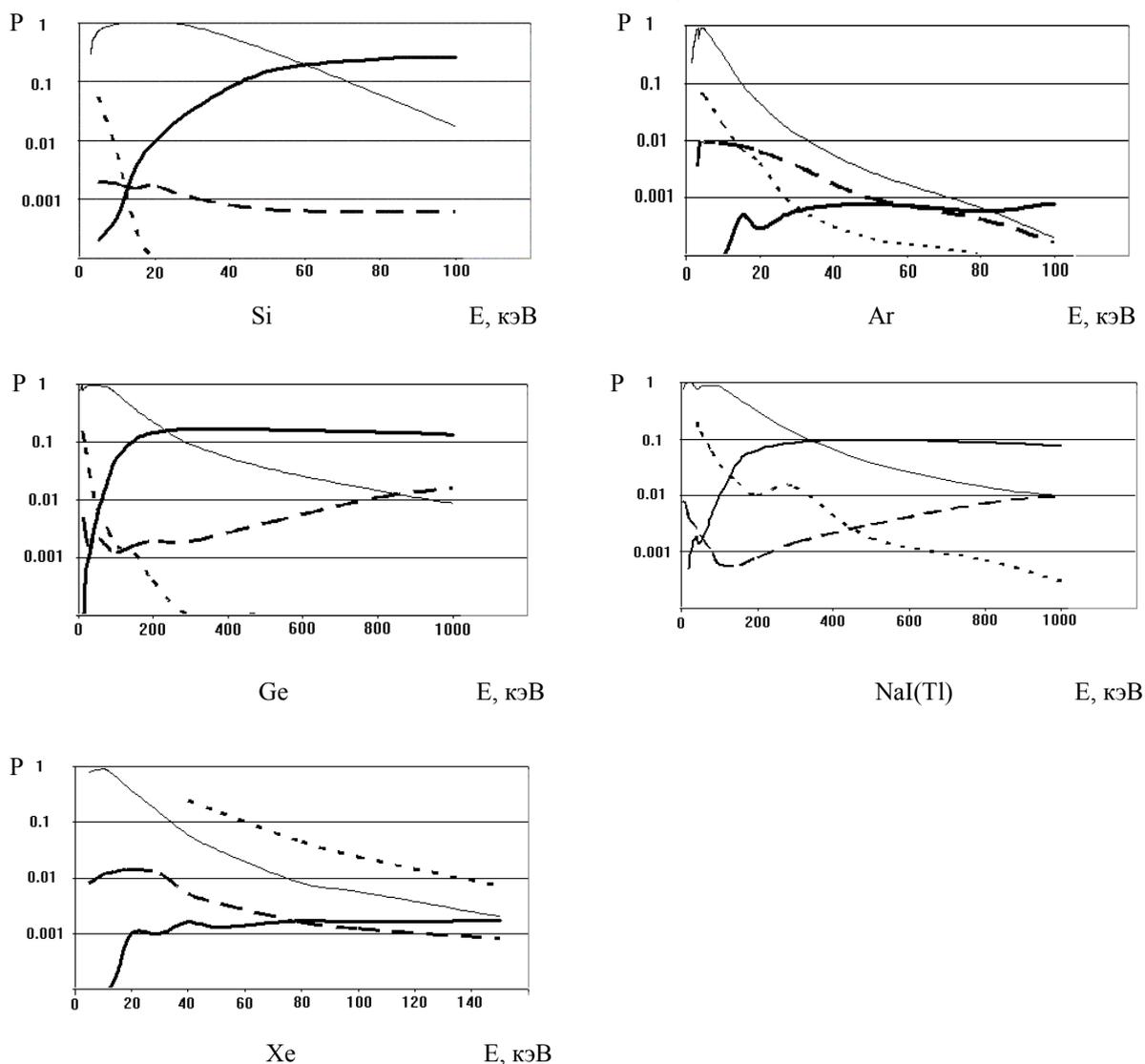


Рис. 2.9. Зависимость вероятности полного поглощения энергии фотона в детекторе (тонкая непрерывная линия), регистрации фотона в «горбе потерь» (толстая непрерывная линия), регистрации фотона в пике К-фотопотерь (точечная линия), регистрации фотона в «хвосте», обусловленном выходом электронов высоких энергий (пунктирная линия) для различных детекторов от энергии фотона.

Геометрические параметры твердотельных Si, Ge детекторов, сцинтиллятора NaI(Tl), принятые для расчетов на рис. 2.9: толщина

рабочего слоя детектора 5 мм, диаметр 40 мм, засветка равномерная, падение пучка нормально к плоскости детектора.

Геометрические параметры газовых детекторов с аргоновым и ксеноновым наполнением: диаметр детектора 30 мм, высота – 50 мм, засветка детектора равномерная в окне 15*15 мм, падение пучка нормально к оси детектора.

Как видно из рис. 2.9, эффективность детекторов падает в области малых энергий, где Ве окно, толщина которого принята в расчетах равной 0.25 мм, поглощает практически все излучение с энергией менее 2 кэВ³.

Сечение фотопоглощения уменьшается с ростом энергии примерно как $1/E^3$. С падением сечения резко начинает увеличиваться длина свободного пробега без взаимодействия. Когда длина свободного пробега фотона становится соизмеримой с толщиной детектора, естественно, начинает падать эффективность регистрации (полного сбора энергии детектором). В это же время, исходя из примерного постоянства сечения комптоновского рассеяния, растет вероятность выхода фотона из детектора после комптоновского взаимодействия с регистрацией в «горбе потерь».

Вероятность регистрации фотона в пике К-фотопотерь для детекторов наиболее велика в области энергий выше К края поглощения, поскольку скачок сечения фотопоглощения приводит к тому, что фотон, с одной стороны, поглощается вблизи края детектора, откуда достаточно вероятен выход флуоресцентного фотона через входную плоскость детектора, но уже с резко уменьшенным сечением фотопоглощения. С ростом энергии вероятность выхода флуоресцентного фотона для

³ При толщине 50 мкм Ве окно обеспечивает поглощение излучения с энергией менее 1 кэВ, что соответствует примерно К линии Na.

твёрдых детекторов в рассматриваемой их геометрии падает, поскольку увеличивается длина свободного пробега фотона, и поглощение происходит ближе к центральной области детектора, выход из которой флуоресцентного фотона маловероятен.

Для газовых детекторов на рис. 2.9 были приняты размеры, характерные для используемых в рентгеновском анализе. При этом для возникшего в детекторе К флуоресцентного фотона вероятность его выхода из детектора является очень большой по указанным выше причинам. Так, вероятность регистрации в К пике фотопотерь для Ag детектора составляет около 10% от вероятности полного сбора энергии (выход флуоресценции – 12%), а для Xe детектора вероятность регистрации в К пике фотопотерь даже выше, чем вероятность регистраций фотона с полным сбором энергии (выход флуоресценции для К оболочки - 90%).

Вероятность регистрации в «хвосте», обусловленном выходом электронов высоких энергий за пределы чувствительной области детектора является сложной функцией от вероятностей процессов и энергий возникающих при этом электронов.

В таблице 2.1 приведены энергии излучения E_{k1} , при которых наблюдается равенство вероятностей регистрации фотона в «хвосте потерь», обусловленном выходом электронов, и регистрации в «горбе потерь», обусловленном выходом фотона из детектора после комптоновского рассеяния. Также приведена энергия E_{k2} , при которой регистрация в «горбе потерь» становится равной вероятности полного поглощения энергии фотона веществом детектора. Если энергия E_{k2} практически совпадает с энергией, при которой коэффициенты фотопоглощения и комптоновского рассеяния становятся равными, то энергия E_{k1} значительно ниже и существенно зависит от геометрии и плотности рабочего вещества детектора.

Таблица 2.1. Характерные энергии детекторов.

Материал детектора	Габариты детектора	Энергии, кэВ	
		Ek1	Ek2
Si(Li)	диаметр 40 мм, толщина 5 мм	15	60
Ge		40	200
NaI(Tl)		40	350

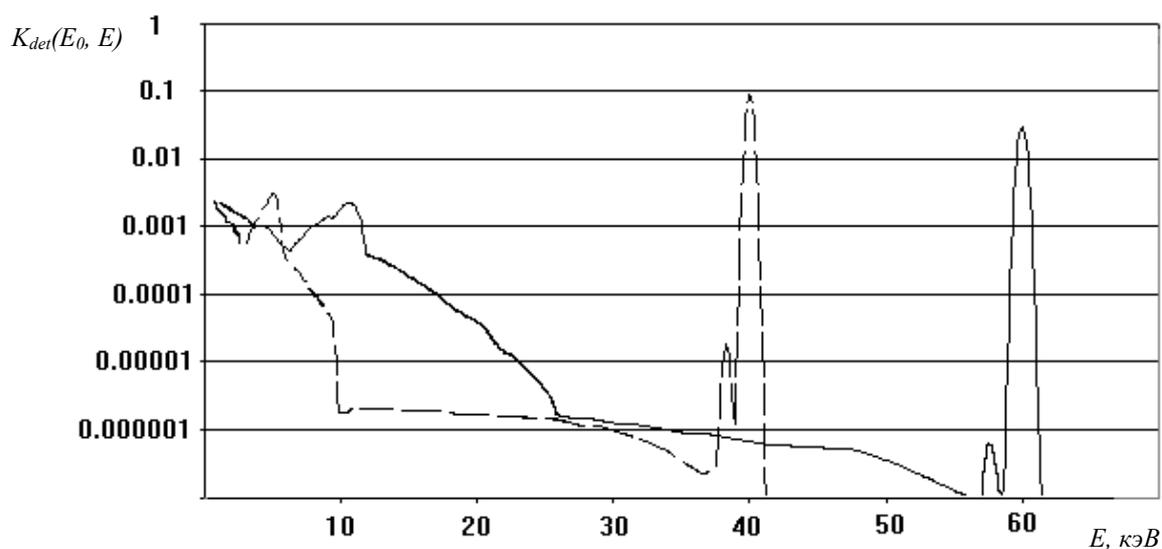


Рис. 2.10. Функция отклика Si(Li) детектора на излучение с энергией 40 кэВ (пунктирная линия) и 60 кэВ (непрерывная линия). Ширина канала, принятая для расчета – 100 эВ. Сечение комптоновского рассеяния – по формуле (1.38). Толщина детектора – 5 мм, нулевая толщина мертвого слоя.

На рис. 2.10 показана рассчитанная по приведенному алгоритму функция отклика детектора на фотоны рентгеновского излучения с энергией 40 кэВ и 60 кэВ при нулевой толщине мертвого слоя и сечении комптоновского рассеяния по формуле (1.38). Как видно из рисунков, функция отклика имеет основную линию, обусловленную полным поглощением фотона в детекторе, и низкоэнергетическое плато - «горб

потерь», с энергией от 0 до максимальной энергии комптоновских электронов, образующихся в Si(Li) детекторе. Также существует вероятность того, что фотон внутри детектора будет дважды рассеян некогерентно. Такому процессу соответствует дополнительный "хвост", примыкающий к области максимальной энергии комптоновского электрона при однократном взаимодействии.

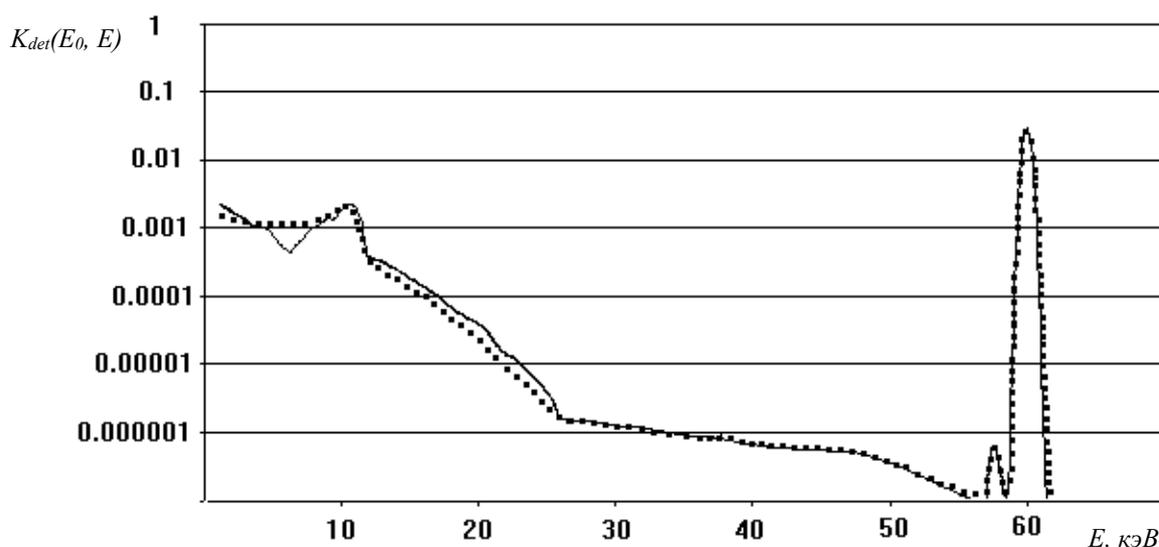


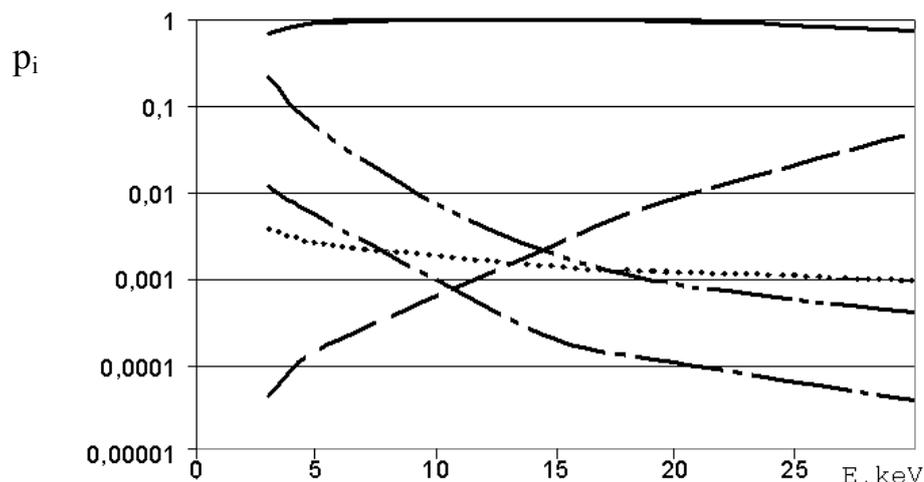
Рис. 2.11. Сравнение функции отклика Si детектора при использовании сечения по формуле (1.38) – непрерывная линия и (1.41) – точечная линия, энергии излучения 60 кэВ и толщине детектора 5 мм, нулевой толщине мертвого слоя.

На рисунке 2.11 приводится сравнение результатов расчета функции отклика Si детектора при энергии излучения 60 кВ и использовании сечений по формулам (1.38) [105] и (1.41) [146] соответственно. Из рисунка видно, что глубина впадины в горбе потерь при использовании формулы (1.41) существенно меньше, чем при использовании формулы (1.38). Соответствующие отличия объясняются существенным отличием

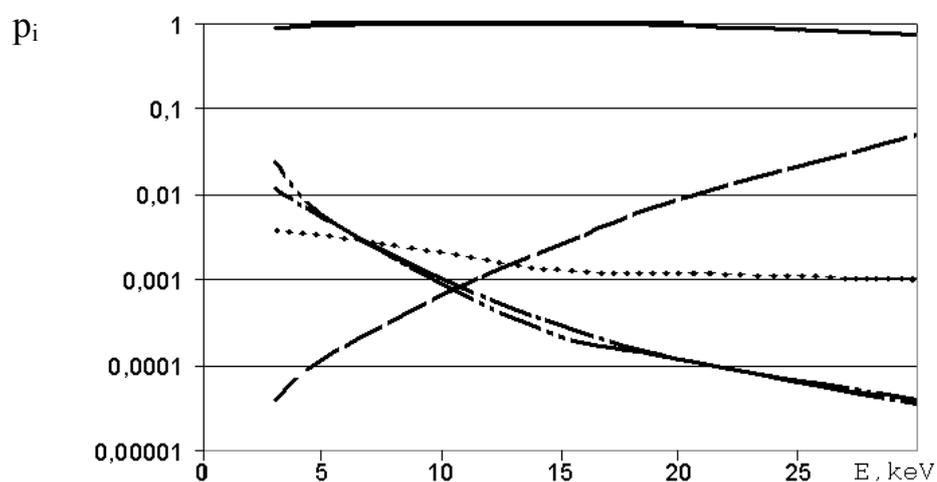
дифференциальных сечений по указанным формулам при практическом равенстве интегральных сечений комптоновского рассеяния. В дальнейшем будет показано, что при использовании сечения (1.41) работы [146] результаты расчетов лучше согласуются с экспериментальными. Однако, при расчете интегральных вероятностей регистрации фотона в различных областях функции отклика детектора различия при использовании формул (1.38) и (1.41) составляют не более 2% в диапазоне энергий 2-80 кэВ, что не является значимым для целей данной работы. При этом следует отметить, что в работе [146] фактор $J(q)$, учитывающий магнитный момент электронов и разделенный на факторы для внутренних электронов атома и электронов кристаллической решетки приведен только для материалов, используемых в детекторах – алмазе, Si и Ge, что делает невозможным прямое применение результатов этой работы в расчетах рассеяния на образце в РФА.

На рисунке 2.12 рассмотрены вероятности регистрации фотона в различных частях функции отклика детектора при толщине мертвых слоев детектора 1 мкм (а) и 0,1 мкм (б) при энергиях регистрируемых фотонов 3-30 кэВ. Из рисунка видно:

- вероятности регистрации фотона в хвосте потерь, обусловленном неполным сбором заряда, в данных диапазонах толщин мертвых слоев детектора пропорционально толщине мертвого слоя детектора, поскольку при данных энергиях эти толщины мертвого слоя являются меньшими, чем длина свободного пробега фотона в Si;



а)



б)

Рис. 2.12. Вероятности регистрации в разных частях функции отклика детектора при одинаковой толщине мертвого слоя для электронов и дырок. Сплошная линия – вероятность регистрации в пике полного поглощения (эффективность детектора), пунктирная линия – вероятность регистрации в горбе потерь, точечная линия – вероятность регистрации в хвосте потерь, обусловленном выходом электронов высоких энергий из детектора, штрих-пунктирная линия – вероятность регистрации в пике фотопотерь, линия штрих-две точки – вероятность регистрации в хвосте, обусловленном неполным сбором заряда. Толщина Si детектора – 5 мм.

а) толщина мертвого слоя 1 мкм, модель по формуле (2.3).

б) толщина мертвого слоя 0,1 мкм, модель по формуле (2.3).

- поведение вероятности неполного сбора заряда похоже на поведение вероятности регистрации фотона в пике фотопотерь, поскольку обе вероятности быстро уменьшаются с увеличением энергии фотона из-за резкого увеличения длины свободного пробега фотона в кремнии при увеличении энергии фотона;

- равенство вероятности регистрации в хвосте потерь, обусловленном выходом электронов высоких энергий и вероятности регистрации в хвосте потерь, обусловленном неполным сбором заряда наступает при энергии порядка 7 кэВ при толщине мертвого слоя 0,1 мкм и при энергии порядка 17 кэВ при толщине мертвого слоя 1 мкм. При энергии выше указанной начинает доминировать вероятность регистрации в хвосте потерь;

- при большой толщине мертвого слоя детектора в функции отклика детектора наблюдается некоторое уменьшение эффективности детектора (регистрации в пике полного поглощения), обусловленное достаточно большой толщиной дополнительного «кремниевого входного окна», обусловленного мертвым слоем;

- вероятности регистрации в остальных частях функции отклика детектора (пике фотопотерь, горбе потерь, обусловленном выходом фотонов после комптоновского рассеяния в детекторе, хвосте потерь, обусловленном выходом электронов высоких энергий) остаются практически неизменными при изменении мертвого слоя детектора в указанных пределах и толщине детектора 5 мм.

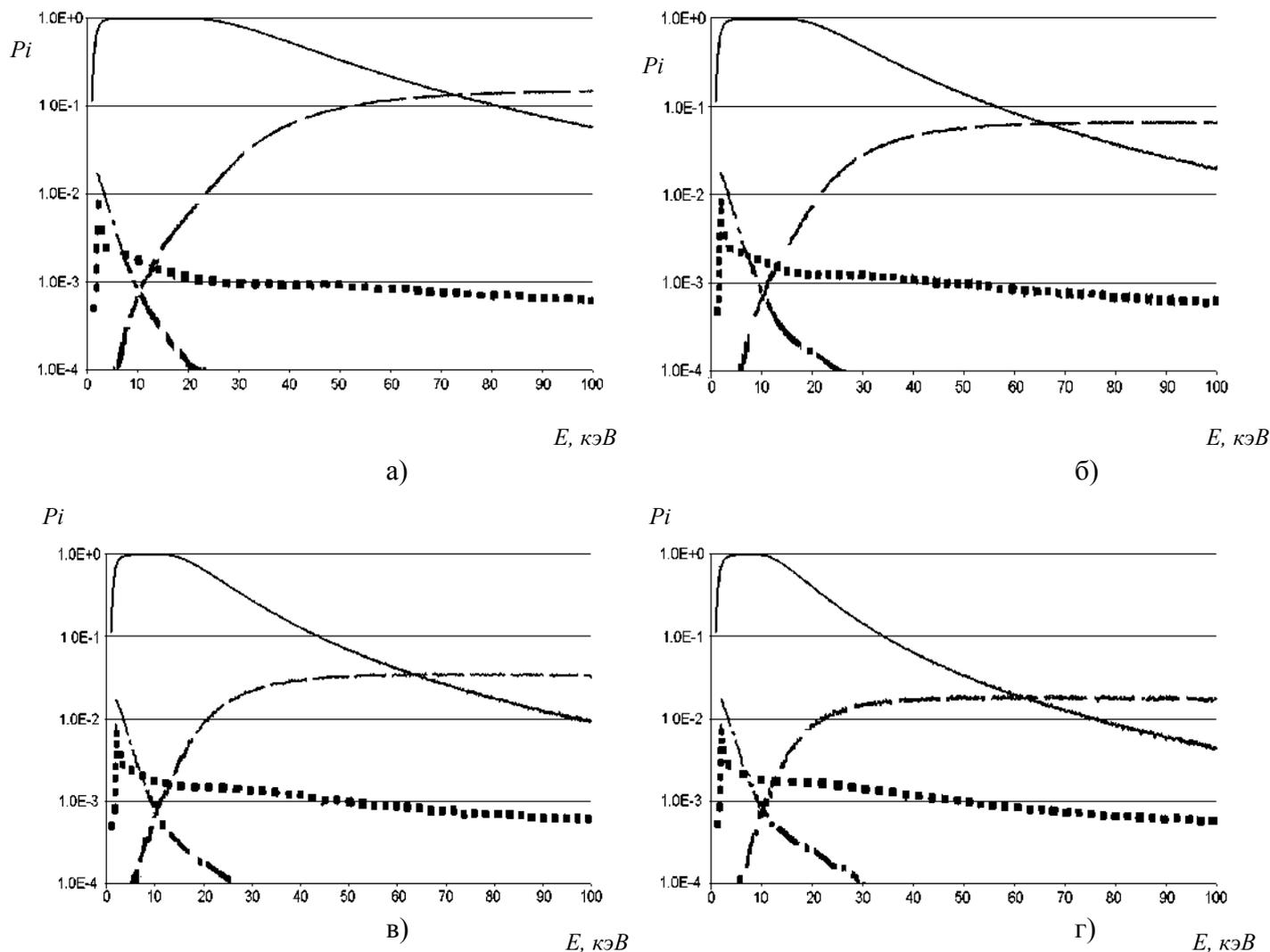


Рис. 2.13. Зависимость вероятностей $p_{эфф}$ полного поглощения энергии фотона в детекторе (непрерывная линия), регистрации фотона в «горбе потерь» $p_{кп}$ (пунктирная линия), регистрации фотона в пике К-фотопотерь $p_{фп}$ (штрих-пунктирная линия), регистрации фотона в «хвосте», обусловленном выходом электронов высоких энергий $p_{эн}$ (точечная линия) для Si детекторов различной толщины от энергии фотона при центральном нормальном к поверхности детектора падении пучка.

Толщина детекторов, мм: а) – 6; б) - 2,5; в) - 1,2; г) - 0,6.

Результаты расчета вероятностей регистрации фотона в различных частях функции отклика детектора при изменении толщины детектора показаны на рис. 2.13 для Si детектора и рис 2.14 для Ge детектора. Из рисунков видно, что изменение толщины детектора в основном влияет на вероятность регистрации фотона в пике полного поглощения и в горбе потерь, обусловленном выходом из детектора комптоновски рассеянного фотона с последующей регистрацией комптоновского электрона. Вероятности регистрации в пике К фотопотерь и в хвосте потерь, обусловленном выходом электронов высоких энергий, остаются практически постоянными. Это обусловлено тем, что покидающие детектор флуоресцентные фотоны и электроны высокой энергии, обуславливающие регистрацию падающих фотонов в соответствующих пиках потерь и хвостах потерь, выходят из детектора в основном через входную поверхность детектора, а если направление фотона или электрона будет вовнутрь детектора, то они, скорее всего, поглотятся и будут зарегистрированы в пике полного поглощения. То, что потери в основном происходят через входную поверхность детектора, будет использоваться при рассмотрении комбинированных двухслойных детекторов.

Для Si детектора энергия фотонов, при которой вероятность регистрации в горбе потерь, обусловленном выходом комптоновски рассеянных фотонов становится равной вероятности регистрации в хвосте, обусловленном выходом из детектора электронов высокой энергии, равна примерно 15 кэВ. Начиная примерно с этой энергии можно говорить о необходимости учета регистрации в горбе потерь для корректного описания формы функции отклика детектора.

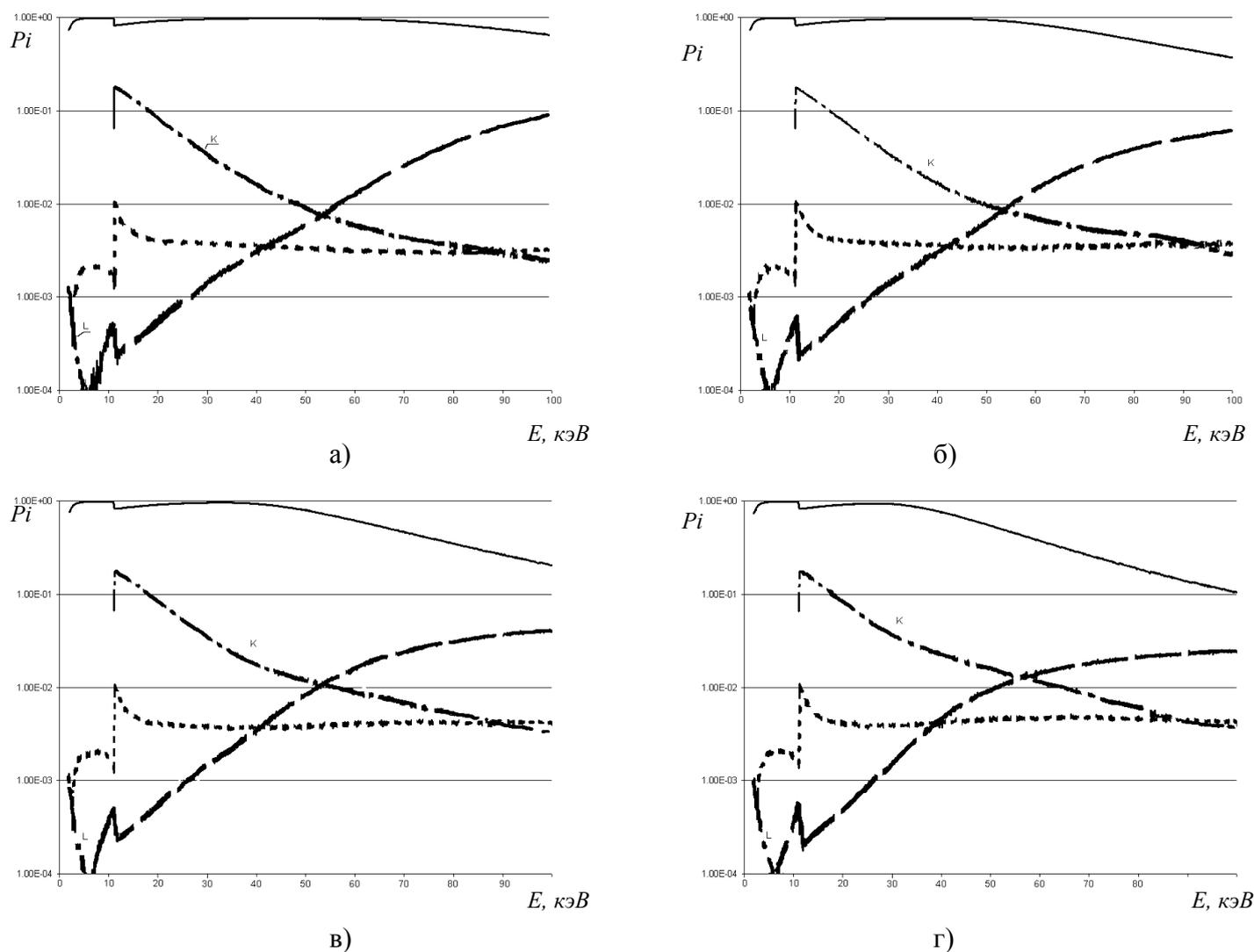


Рис. 2.14. Зависимость вероятностей $p_{эфф}$ полного поглощения энергии фотона в детекторе (непрерывная линия), регистрации фотона в «горбе потерь» $p_{кп}$ (пунктирная линия), регистрации фотона в пиках К-фотопотерь p_{fn} (штрих-пунктирная линия – отдельно для К и L серий), регистрации фотона в «хвосте», обусловленном выходом электронов высоких энергий $p_{эн}$ (точечная линия) для Ge детекторов различной толщины от энергии фотона при центральном нормальном к поверхности детектора падении пучка.

Толщина детекторов, мм: а) – 5; б) - 2; в) - 1; г) - 0,5.

Для Si детектора вероятности регистрации в горбе потерь и в пике полного поглощения становятся равными при энергии фотонов 60-70 кэВ для всех рассматриваемых толщин детектора (0,5-5 мм). Это обусловлено тем, что комптоновски рассеянный фотон в этом диапазоне энергий и толщин вероятнее всего выходит из детектора после однократного акта комптоновского рассеяния. Следует отметить, что с падением вероятности полного поглощения при этих энергиях с уменьшением толщины детектора падает и вероятность регистрации в горбе потерь. Последний факт также будет полезен при рассмотрении двухслойных комбинированных детекторов.

Параметры функции отклика Ge детектора (рис. 2.14) несколько отличается от функции отклика Si- детектора:

- в области энергий фотонов ниже K - края поглощения германия, примерно до 5 кэВ, существенным является L пик фотопотерь, содержащий компоненты, соответствующие L излучению германия;

- в области энергий фотонов выше K - края поглощения Ge очень большая вероятность выхода флуоресцентного фотона германия из детектора, вследствие большего, чем у кремния, выхода флуоресценции. Это обуславливает очень большую вероятность (порядка 20%) регистрации фотона в пике K - фотопотерь. При увеличении энергии фотона вероятность регистрации в пике K - фотопотерь монотонно убывает, однако до энергий порядка 50-60 кэВ составляет не менее 1%. Следствием этого в спектрах будут регистрироваться «линии», отличающиеся от ярких линий спектра на энергию K_{α} и K_{β} флуоресцентных квантов германия;

- вероятность регистрации в «горбе потерь» существенно меньше таковой для Si- детектора.

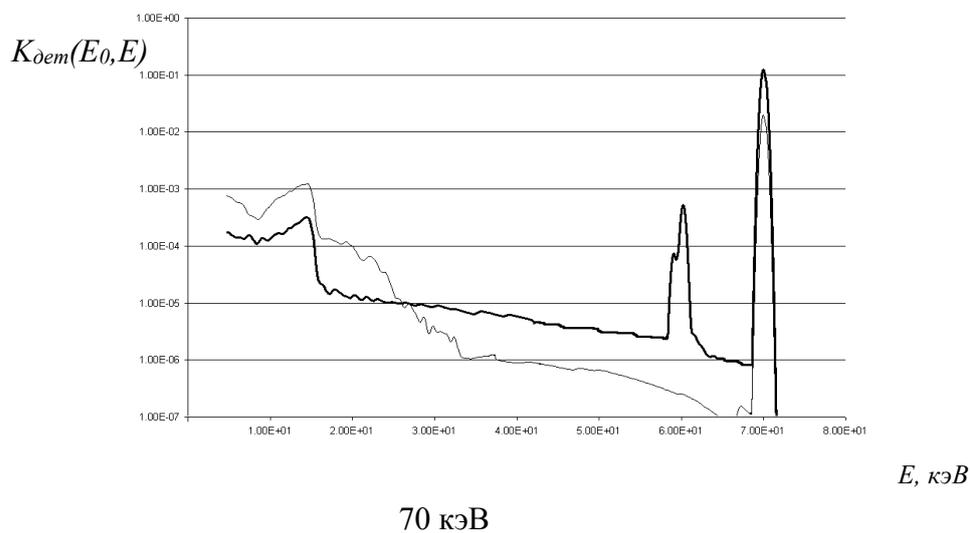
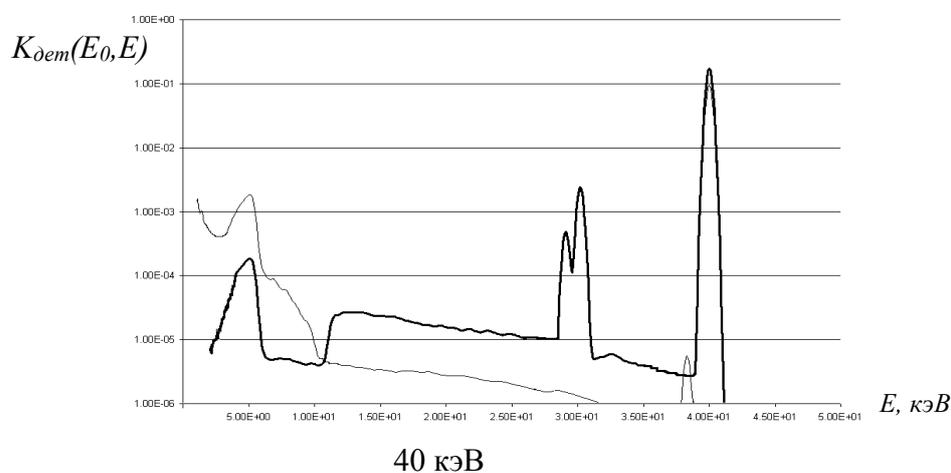
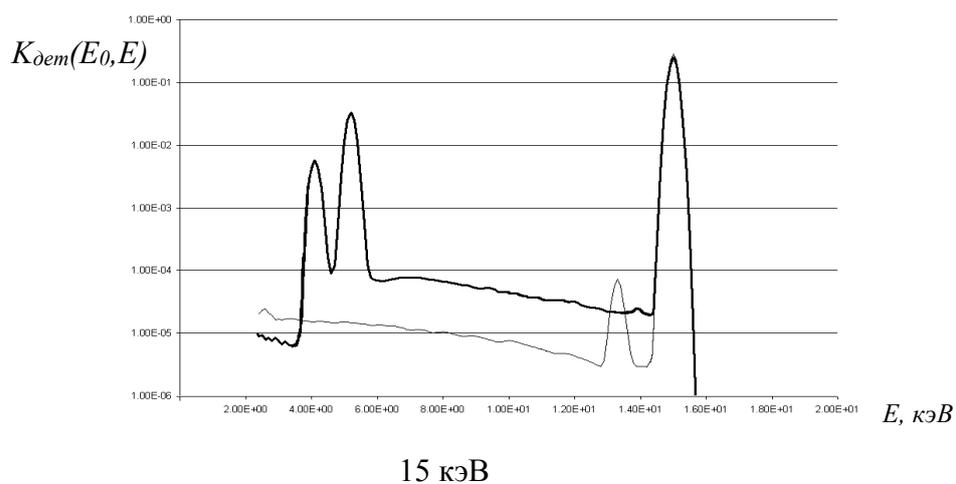


Рис. 2.15. Сопоставление функций отклика детектора при (условно) равном энергетическом разрешении и энергиях излучения 15, 40, 70 кэВ. Толстая линия – Ge детектор толщиной 5 мм, тонкая – Si детектор толщиной 6 мм. Нулевая толщина мертвого слоя.

На рис. 2.15 сопоставлены рассчитанные функции отклика Si и Ge детекторов для энергий фотона 15, 40 и 70 кэВ. Следует отметить, что для Ge детектора пик фотопотерь будет существенно увеличивать фон в соответствующей области энергий.

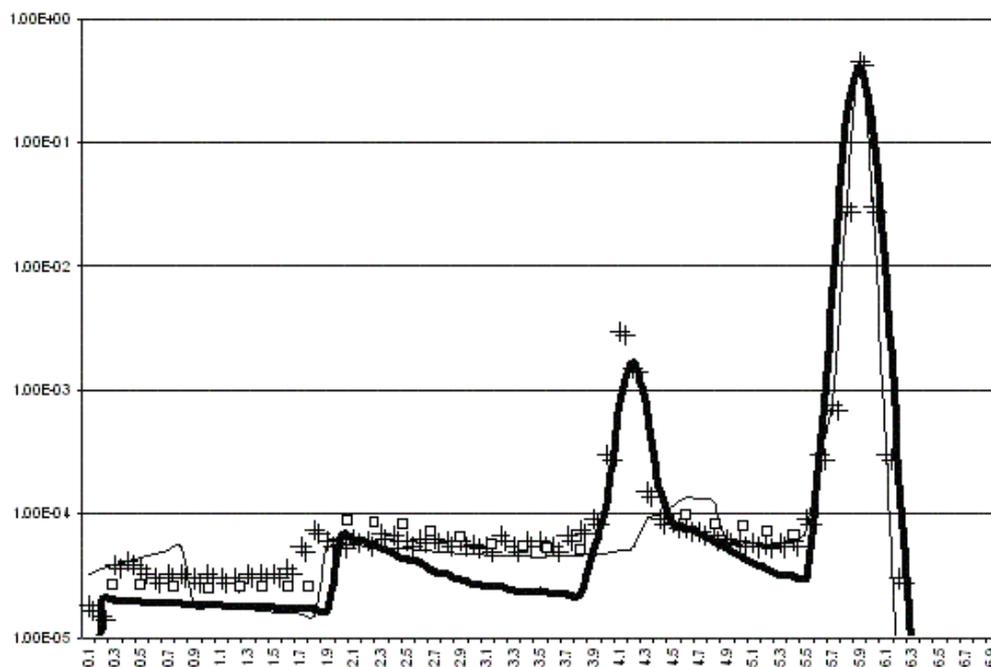
2.3. Экспериментальная проверка результатов расчета функции отклика детектора в области энергий до 10 кэВ.

Поскольку из результатов расчетов, представленных на рис. 2.12 следует различная значимость «горба потерь» для Si детектора в областях ниже и выше 10 кэВ, эти области будут рассмотрены отдельно.

В рамках данной части работы будет принята модель мертвого слоя по формуле (2.3).

На рис. 2.16 рассчитанная функция отклика Si(Li) детектора на излучение с энергией 5.9 кэВ сопоставлена с расчетными и экспериментальными данными работы [365]. Наблюдается удовлетворительное согласие при расчетах без учета неполного сбора заряда в мертвом слое детектора и хорошее соответствие при расчетах с учетом мертвого слоя.

Сопоставление расчетных и экспериментальных данных по соотношению пика полного поглощения и пика потерь приведено на рис. 2.17 по данным работы [364]. Облучение набора детекторов производилось излучением изотопа ^{55}Fe . Согласие между данным экспериментом и расчетом даже лучше, чем с экспериментом работы [365], что может объясняться некоторыми особенностями экспериментов, не описанных в работе [365].



E, кэВ

Рис. 2.16. Данные о функции отклика Si(Li) детектора при регистрации излучения с энергией 5.9 кэВ. Толстая линия – наши расчеты без учета мертвого слоя, квадраты – наш расчет при толщине мертвого слоя 0,2 мкм (там, где данные отличаются от данных с нулевым мертвым слоем), тонкая линия и кресты – расчеты и эксперимент работы [365] соответственно.

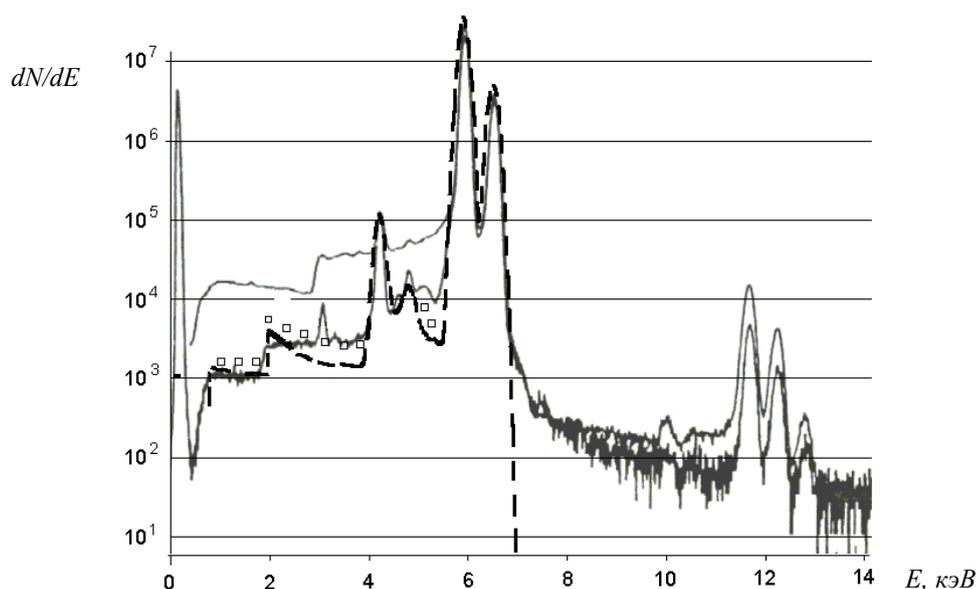


Рис. 2.17. Сопоставление результатов расчетов настоящей работы (пунктирная линия – с нулевой толщиной мертвого слоя, квадраты – с толщиной мертвого слоя 0,2 мкм, там, где результаты расчетов отличаются от данных с нулевой толщиной мертвого слоя) с экспериментальными данными, приведенными в работе [364] для двух детекторов (непрерывная линия).

Пики с энергиями 11.8-12.8 кэВ, а также «хвост» импульсов в область больших энергий объясняются неполной режекцией наложений импульсов.

На рис. 2.18 сопоставлены наши расчетные и экспериментальные данные работы [353] для Ge детектора. Следует отметить хорошее соответствие при толщине мертвого слоя 0,2 мкм, характерного для высококачественных детекторов.

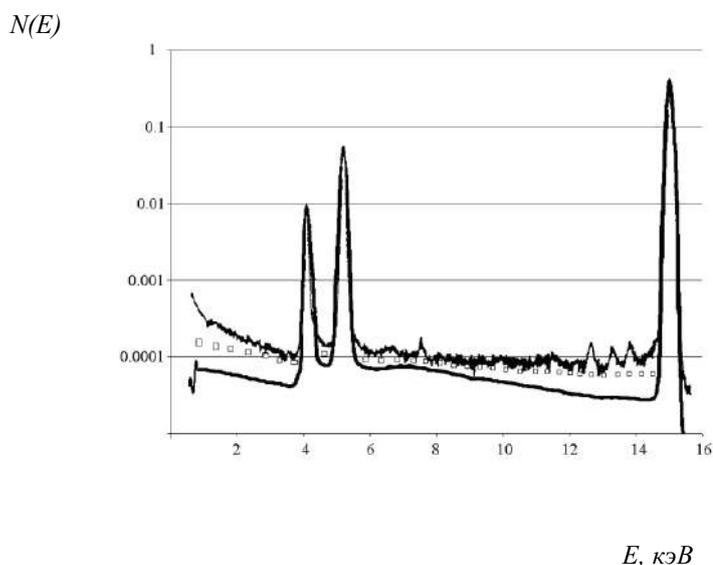


Рис. 2.18. Сопоставление расчетных и экспериментальных данных.

Расчеты настоящей работы (толстая линия – для детекторов с нулевым мертвым слоем, квадраты – для детектора с толщиной мертвого слоя 0,2 мкм, там, где данные отличаются от данных с нулевым мертвым слоем) и экспериментальные данные, полученные в работе [353] (тонкая линия) для Ge детектора. Источник излучения с энергией 15 кэВ.

Следует отметить, что результаты приведенных расчетов функции отклика детектора определяют лишь предельные характеристики детекторов излучения, обусловленные процессами поглощения энергии веществом. Дальнейшие процессы регистрации (см. рис. 1.9) могут ухудшить характеристики детектора.

Таким образом, можно считать, что предложенная модель регистрации рентгеновских фотонов детектором соответствует современным теоретическим представлениям и экспериментальным данным для Si и Ge детектора в области энергий до 15 кэВ.

2.4. Сопоставление результатов расчета функции отклика детектора с экспериментальными данными для энергий излучения более 10 кэВ.

Для сопоставления данных расчета с экспериментальными данными следует учитывать, что в выходном окне радиоактивного источника всегда происходит рассеяние излучения. Расчет спектра излучения, рассеянного в выходном Al окне радиоизотопного источника выполняется по модели, аналогичной детектору и приведенной выше, при этом анализируется спектр излучения, прошедшего через окно.

На рис. 2.19 а) показаны угловые диаграммы излучения, рассеянного выходным окном излучения радиоизотопного источника.

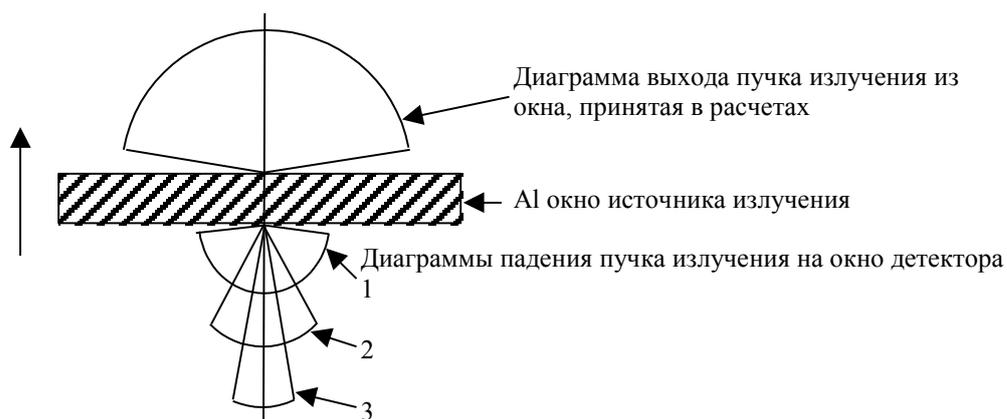
На рис. 2.19 б) показан спектральный состав излучения за 1,5 мм окном источника излучения с энергией 59.6 кэВ для различных угловых диаграмм падения излучения.

Из рис. 2.19 видно, что чем шире угловая диаграмма падения излучения на окно радиоизотопного источника, тем шире плато комптоновского рассеяния на выходе окна, что объясняется бóльшим диапазоном углов Θ при рассеянии.

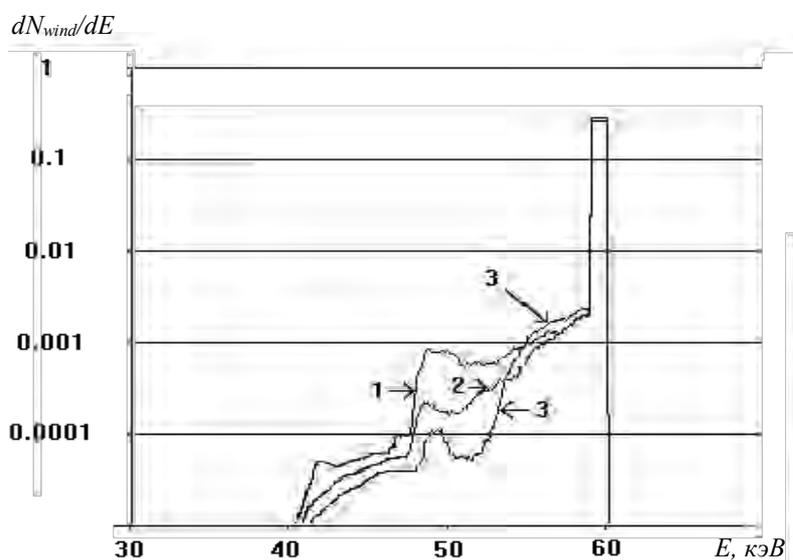
Результат измерения энергетического распределения носит вероятностный характер. Математическое ожидание результата измерения энергетического распределения $N(E)$ может быть представлено как

$$N(E) = \int N_0(E_0) \cdot K_{det}(E_0, E) \cdot dE_0, \quad (2.12)$$

где $N_0(E_0)$ - математическое ожидание энергетического распределения фотонов, попавших в детектор, $K_{det}(E_0, E)$ - функция отклика детектора.



а)



б)

Рис.2.19.

а) Угловые диаграммы, принятые в расчетах спектра излучения, прошедшего сквозь выходное окно.

б) Спектр рассеянного излучения с энергией 59.6 кэВ, прошедшего сквозь Al окно толщиной 1.5 мм при различной геометрии падающего излучения (расчет методом Монте-Карло). Энергетическое разрешение – 1 кэВ. Номера спектров совпадают с номерами диаграмм направленности.

Экспериментальная проверка модели Si(Li) детектора проведена путем сопоставления расчетных и экспериментальных данных при облучении детектора радиоизотопными источниками ^{241}Am (рис. 2.20) и ^{109}Cd (рис. 2.21). Толщина Al окна радиоактивного источника ^{241}Am принималась равной 2 мм, ^{109}Cd – 1 мм. Результаты расчетов хорошо ($\pm 30\%$) согласуются с экспериментальными данными для области энергий 0-25 кэВ и 40-60 кэВ при использовании источника ^{241}Am , для области энергий 0-25 кэВ и 65-88 кэВ для источника ^{109}Cd , что позволяет говорить о правильности модели в данных областях энергий.

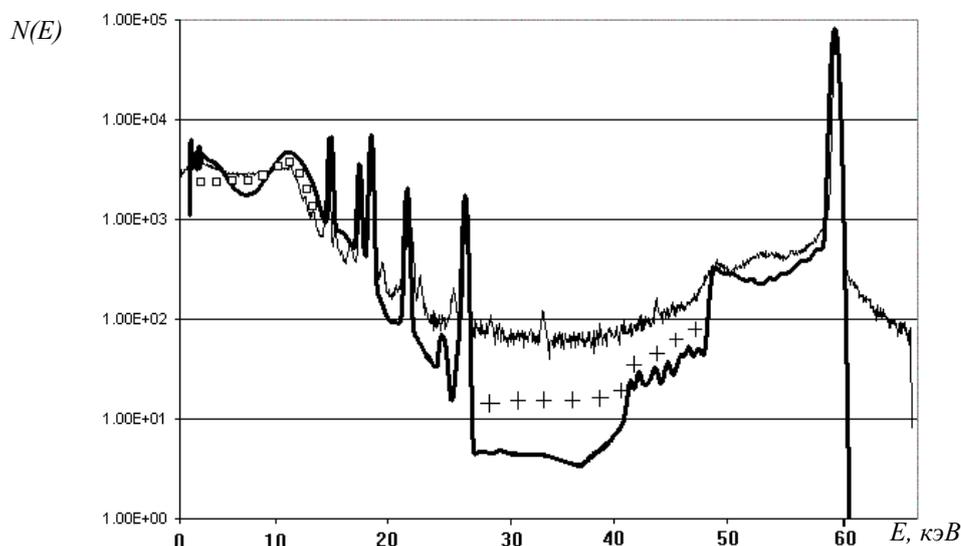


Рис. 2.20. Амплитудный спектр, полученный при облучении Si(Li) детектора излучением источника ^{241}Am . Толстая линия – расчет с нулевым мертвым слоем и сечением комптоновского рассеяния по формуле (1.38), отличия при использовании сечения комптоновского рассеяния по формуле (1.41) – квадраты, отличия при толщине мертвого слоя 1 мкм - кресты, тонкая – эксперимент.

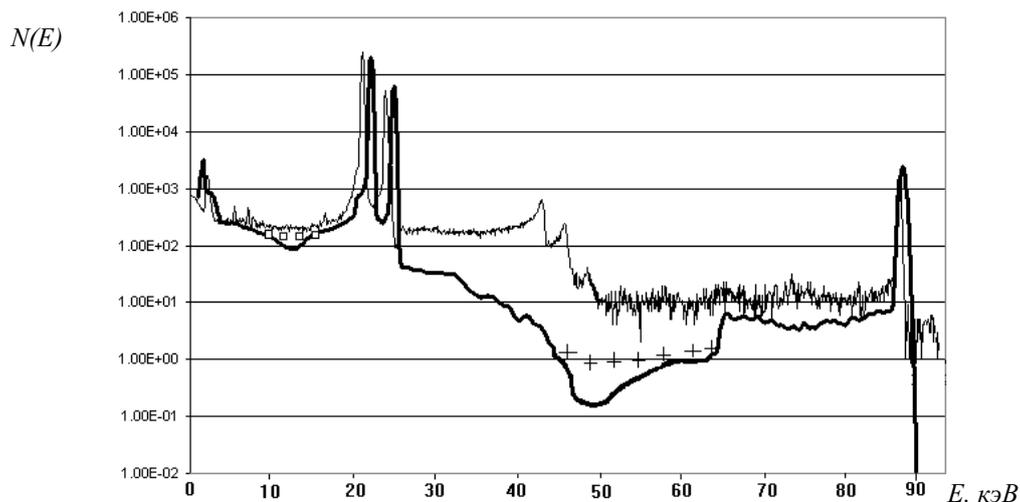


Рис. 2.21. Амплитудный спектр, полученный при облучении Si(Li) детектора излучением источника ^{109}Cd . Толстая линия – расчет с использованием сечения (1.38) и при нулевой толщине мертвого слоя, квадраты – отличия в расчетах при использовании сечения (1.41), кресты – отличия при толщине мертвого слоя 1 мкм, тонкая – эксперимент.

Следует отметить также уменьшение ошибки с 40% до 15% для описания горба потерь при переходе от сечения (1.38) к сечению (1.41) с учетом момента рассеивающего электрона.

Неудовлетворительное согласие расчетов с экспериментальными данными в границах между этими энергиями можно объяснить тем, что в расчетах для ^{241}Am не учтено тормозное излучение альфа частиц и электронов, возникающих вследствие торможения альфа частиц [70], а для источника ^{109}Cd – тормозное излучение Оже – электронов. Также не до конца ясна схема распада ^{109}Cd и дальнейшей диссипации энергии – по данным работы [22], интенсивность линии с энергией 88 кэВ должна быть примерно 1 фотон/распад (единственный переход ядра из возбужденного состояния в основное), по данным работы [20] и экспериментальным данным она составляет 4%.

Хотя гамма область спектра не является основным предметом рассмотрения данной работы, работоспособность метода расчетов параметров функции отклика детектора была проверена и в этой области. При энергии фотона выше 1022 кэВ необходимо учитывать сечение рождения электрон-позитронных пар. Согласно работе [154] это сечение будет равно сечению комптоновского рассеяния при энергии порядка 3-10 МэВ для различных материалов детектора. В данной работе сечение Бете-Хейтлера и поправка $K(Z)$ для сечения в области низких энергий, связанная с экранированием атомного ядра электронами находилась путем интерполяции данных, приведенных в работах [39, 153].

На рис. 2.22 сопоставлены расчетные данные о спектре сигнала, возникающего при облучении Ge детектора излучением ^{60}Co [460]. Расчет сделан исходя из гауссовой формы спектральной линии с шириной 2.1 кэВ на полувысоте линии с энергией 1173 кэВ. Распределения нормированы по высоте «горба потерь». Расхождение данных по соотношению интенсивностей линий и «горба потерь» может быть объяснено как негауссовой формой экспериментально наблюдаемых линий, которую невозможно проанализировать по приведенному в работе [460] рисунку, так и не учетом комптоновской ионизации внутренних оболочек с последующей флуоресценцией [144, 145]. С учетом сказанного можно считать, что данные расчета хорошо согласуются с экспериментальными.

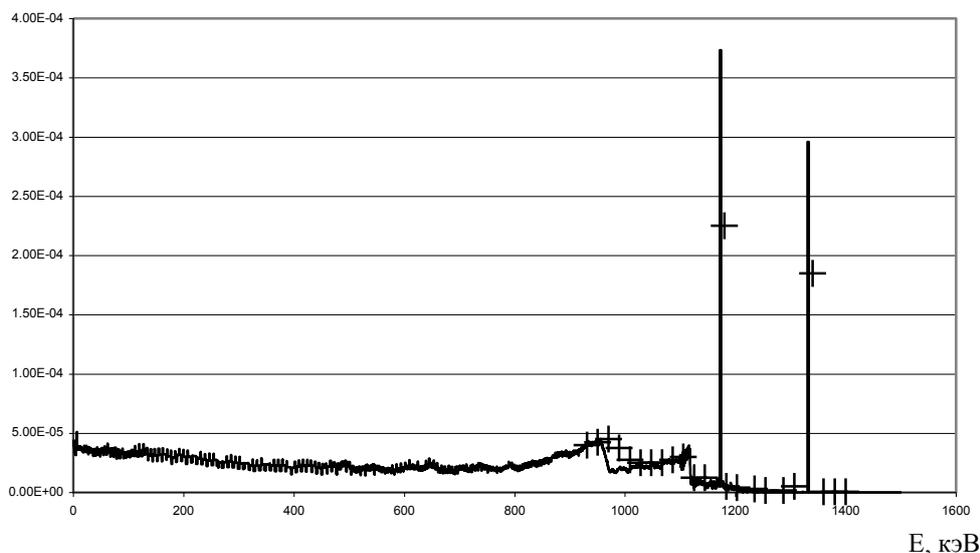


Рис. 2.22. Сопоставление расчетных данных сигнала Ge детектора при его облучении источником ^{60}Co с экспериментальными данными работы [460]. Линия – расчет, кресты – данные работы [460]. Засветка детектора – равномерная.

Рассмотрим изменение отклика ксенонового детектора диаметром 500 мм высотой 300 мм на излучение с энергией 1332 кэВ (одна из линий источника ^{60}Co) в зависимости от давления наполняющего его газа (рис. 2.23). В некотором смысле изменение давления в детекторе эквивалентно пропорциональному изменению геометрических размеров детектора при постоянном давлении. Из рисунка видно, что для данного случая вероятность регистрации в «горбе потерь», обусловленном комптоновским рассеянием, пропорциональна давлению, что объясняется малостью габаритов детектора по сравнению со средней длиной пробега фотона с данной энергией. Вероятность же регистрации полной энергии фотона с падением давления падает гораздо быстрее, что в данном диапазоне энергий для регистрации полной энергии фотона необходима цепочка из нескольких актов комптоновского рассеяния и

последующего фотопоглощения, область траекторий между которыми не укладывается в области детектора при малых давлениях. Кроме того, при уменьшении давления увеличивается относительная вероятность регистрации в пике фотопотерь.

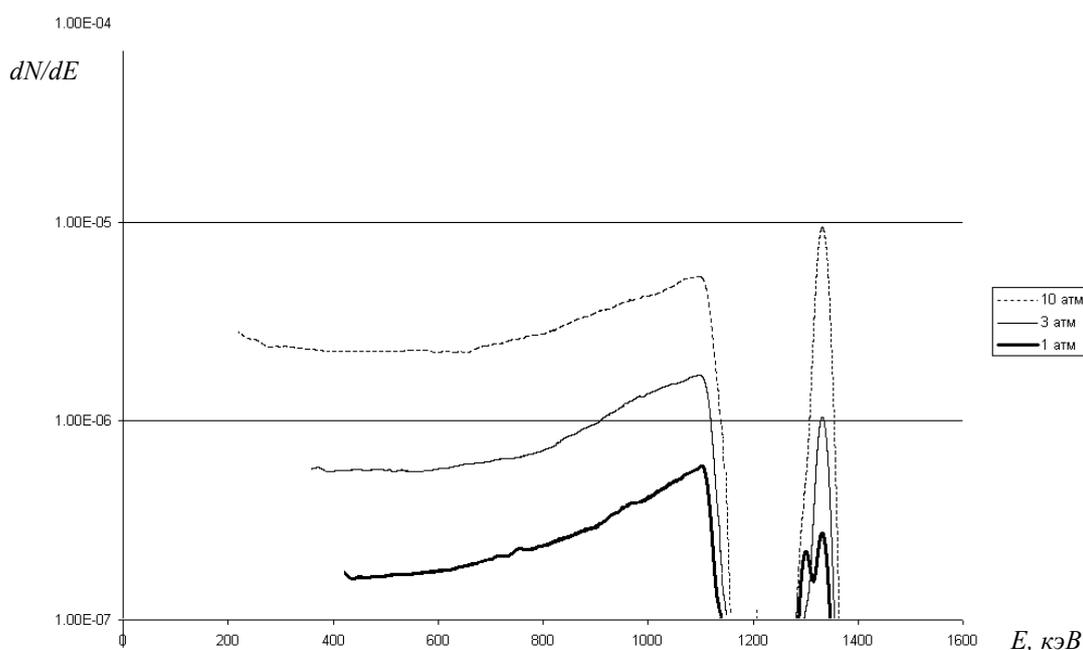


Рис. 2.23. Расчетная оценка зависимости отклика ксенонового детектора на излучение с энергией 1332 кэВ от давления газа в детекторе. Параметры детектора: диаметр детектора 500 мм, высота 300 мм.

Из результатов расчетов следует, что применимость формулы (1.79) для вычисления эффективности детектора ограничена лишь областью энергий, где для его рабочего вещества преобладает фотопоглощение.

Экспериментальная проверка для газовых детекторов проведена путем сопоставления результатов расчетов с экспериментальными данными, приведенными в работе [451], см. рис. 2.24, 2.25. Геометрические параметры детектора в работе не приведены, поэтому

они были нами оценены исходя из приведенной в работе эффективности детектора, а также соотношения между пиком полного поглощения и пиком фотопотерь.

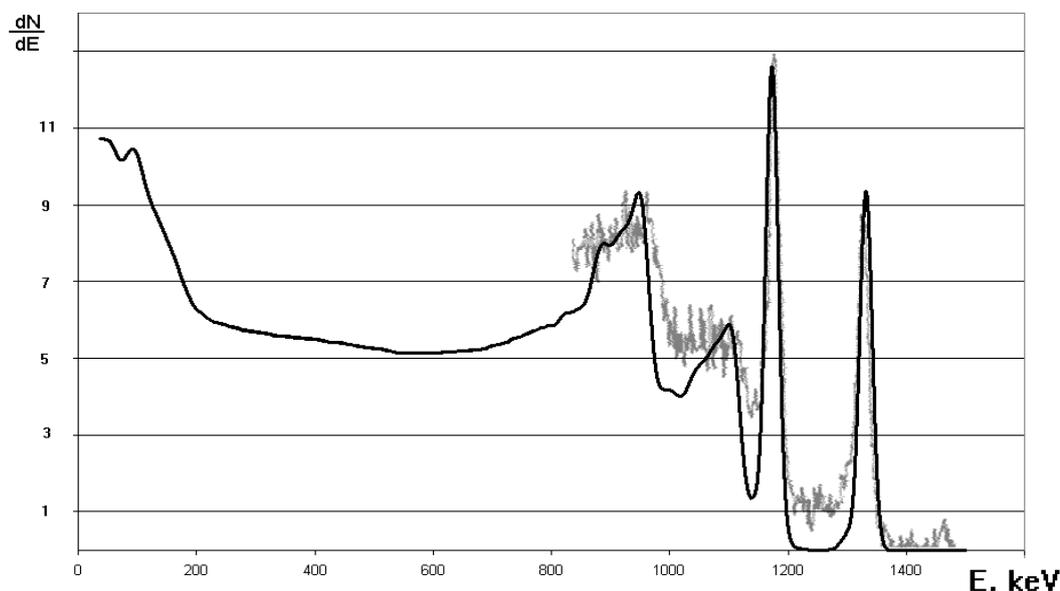


Рис. 2.24. Сопоставление расчетных (толстая черная линия) и экспериментальных данных (серая линия), полученных при облучении ксенонового детектора излучением источника ^{60}Co [451]. Параметры детектора: диаметр детектора 500 мм, высота 300 мм, давление 1 МПа (10 атм).

Приведенные размеры также несколько условны, поскольку при увеличении давления возможно уменьшить геометрические размеры детектора. На рис. 2.24 сопоставлены результаты расчета отклика детектора на излучение источника ^{60}Co . Видно хорошее согласие расчета и эксперимента в области 800-1400 кэВ. На рис. 2.25 сопоставлены результаты расчета и эксперимента при облучении детектора излучением источника ^{137}Cs . Хорошее согласие расчетных и экспериментальных данных наблюдается в области 450-700 кэВ. В области более низких

энергий экспериментально наблюдаемый фон начинает существенно превышать фон, обусловленный «горбом потерь».

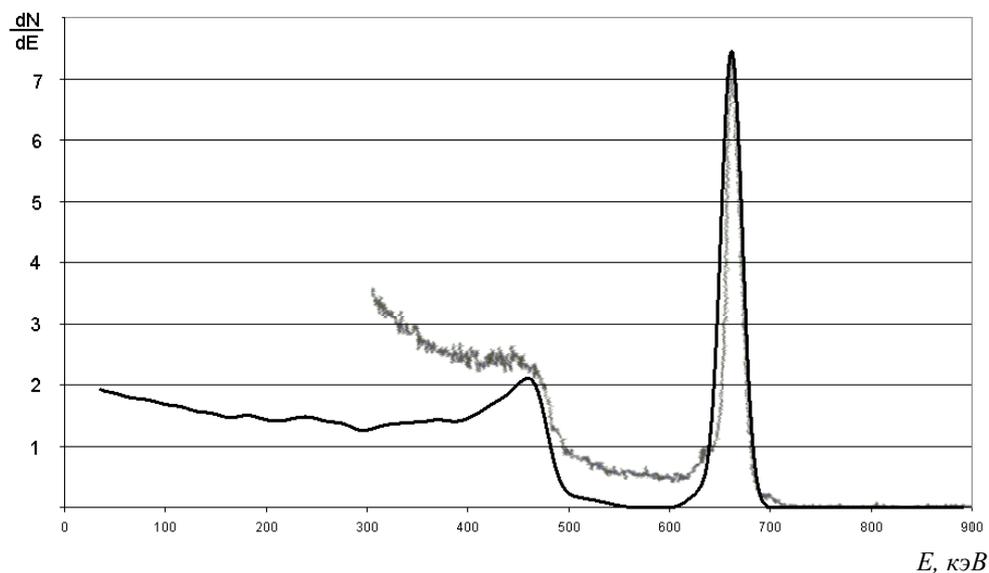


Рис. 2.25. Сопоставление расчетных (толстая черная линия) и экспериментальных данных (серая линия), полученных при облучении ксенонового детектора излучением источника ^{137}Cs [451]. Параметры детектора: диаметр детектора 500 мм, высота 300 мм, давление 1 МПа.

Скорее всего, это связано с процессами потерь малых порций энергий за счет дрейфа электронов в области детектора, где отсутствует сильное электрическое поле (на краях детектора), либо проблемами неполного сбора заряда из-за конечного времени интегрирования (вследствие различных и существенно отличающихся времен дрейфа электронов низких энергий из различных областей детектора или рекомбинации заряда), либо с другими проблемами системы регистрации (см. главу 1).

Следует отметить, что вероятность регистрации в «горбе потерь» при высоких энергиях фотонов существенно выше, чем регистрация в

пике полного поглощения (см., например рис. 2.9, 2.13, 2.14). Параметры «горба потерь» в этой области являются стабильными, поэтому, с точки зрения спектроскопии в жесткой рентгеновской и гамма области излучения, могут быть полезными алгоритмы идентификации спектра, использующие в качестве информации не только линию излучения, но и параметры измеренного «горба потерь».

2.5. Пространственное разрешение координатно – чувствительных детекторов.

Дополнительной информацией, которая может быть получена в результате моделирования методом Монте-Карло, является информация о пространственном распределении траекторий фотонов в материале детектора.

На рис. 2.26 приведены характерные размеры области поглощения в сцинтилляторе NaI(Tl) для энергий первичных фотонов 30, 60, 120 и 180 кэВ. Даже при точечном падении пучка и достаточно высокой энергии первичных фотонов (несколько сотен кэВ) траектории охватывают значительную пространственную область детектора вне зоны первичного пучка, в том числе из-за существенной роли комптоновского рассеяния в процессе поглощения фотонов.

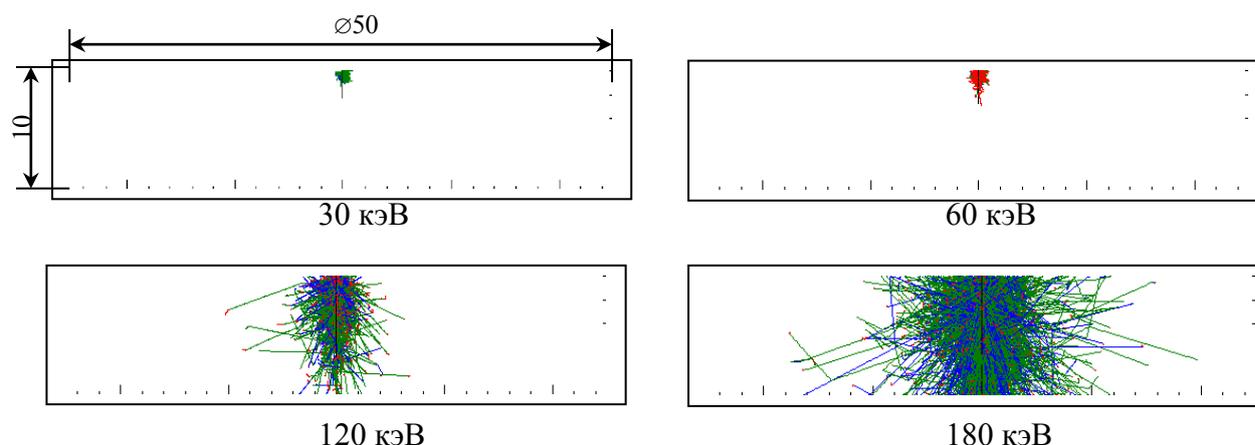


Рис. 2.26. Результаты моделирования размеров области поглощения в NaI(Tl) сцинтилляторе. Падение пучка – центральное, точечное. Геометрические размеры области детектирования: диаметр 50 мм, высота – 10 мм.

На рис. 2.27 приведено сопоставление расчетных данных координаты поглощения энергии в детекторе с экспериментальными данными работы [461]. В работе приведены характеристики пространственного разрешения координатного гамма детектора на основе NaI(Tl) сцинтиллятора с габаритами 450*150*75 мм. Получено достаточно хорошее согласие расчетных и экспериментальных данных. Таким образом, можно считать, что координатное разрешение детекторов, наряду с процессами диффузии медленных электронов (для газовых и полупроводниковых детекторов), ограничивается геометрическими размерами областей поглощения фотона и диссипации энергии электронов высоких энергий.

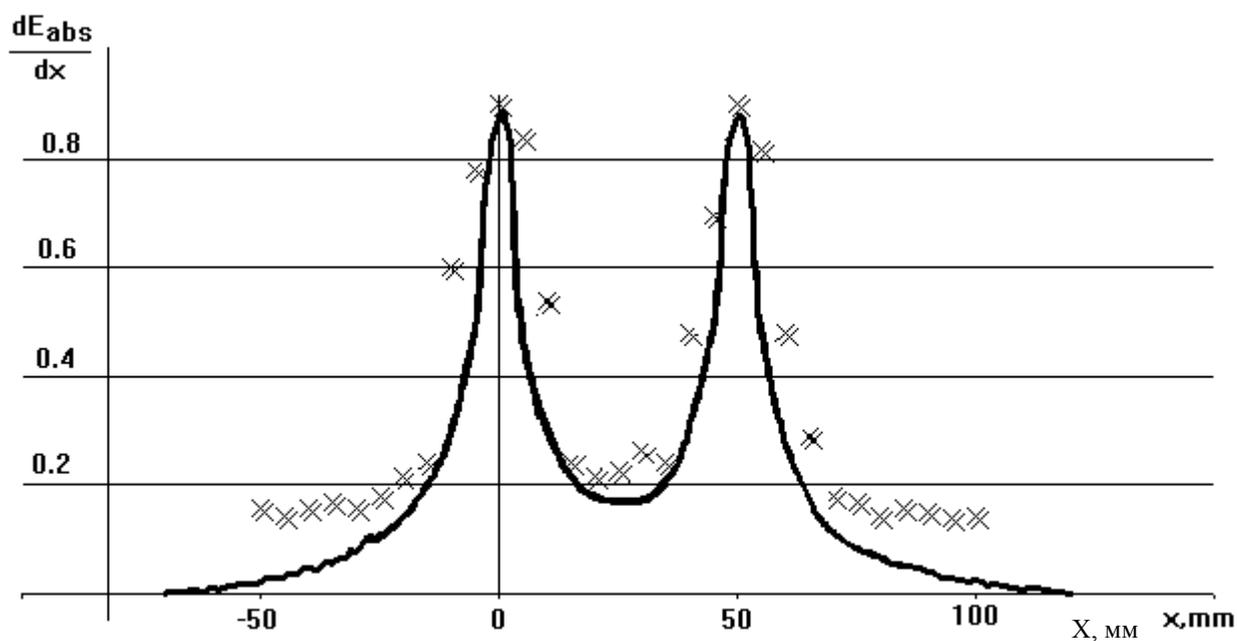
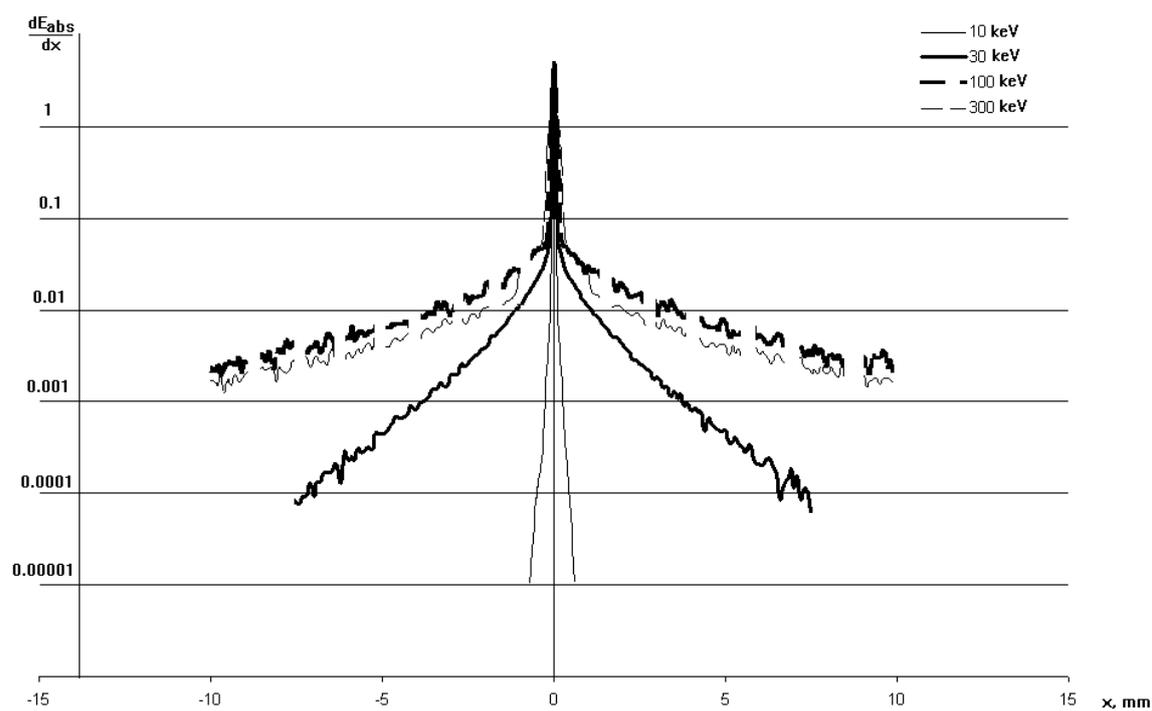
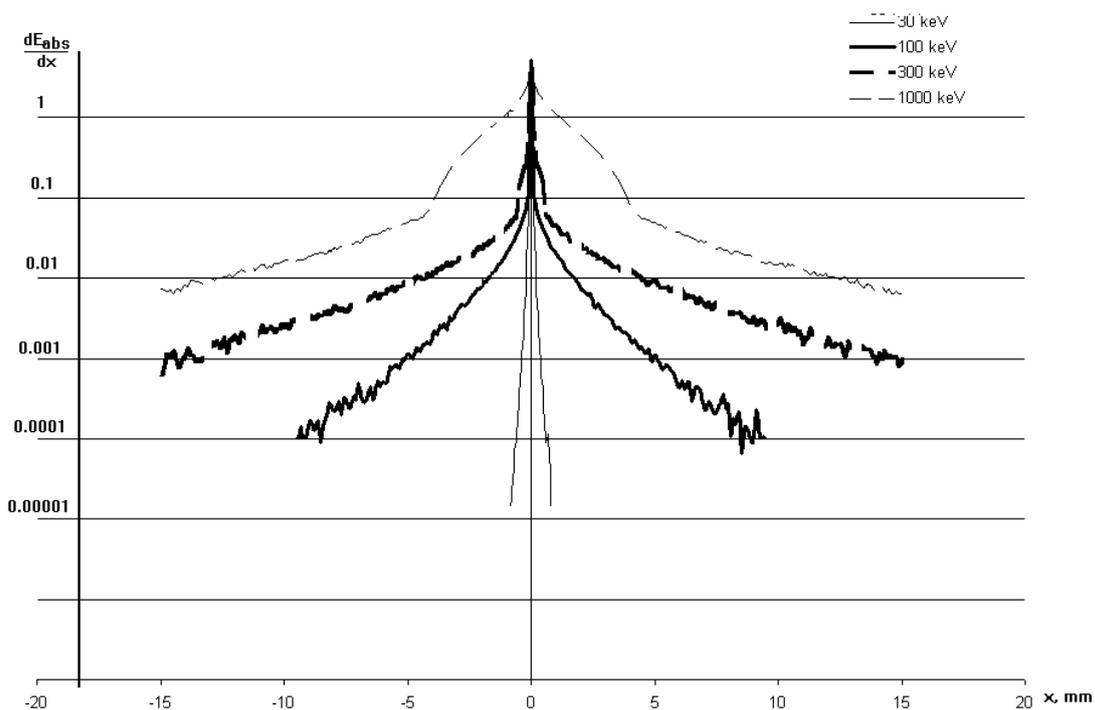


Рис. 2.27. Координатный спектр, полученный в рабочей зоне детектора при расстоянии между линейно сколлимированными источниками гамма излучения с энергией 1836 кэВ, равном 5 см. Непрерывная линия – результаты расчета данной работы, точки – экспериментальные данные работы [461].

Габариты NaI(Tl) сцинтиллятора – 450*150*75 мм.



а)



б)

Рис. 2.28. Координаты поглощения энергии фотона в веществе детектора при различных энергиях фотонов. Падение пучка фотонов (диаметр пучка 0.1 мм) – нормальное, диаметр детекторов 50 мм, толщина – 5 мм.

а) Si(Li) детектор

б) Ge детектор

На рис. 2.28. показаны результаты расчета координатного спектра поглощения энергии в Si(Li) и Ge детекторах при точечном попадании пучка излучения. Очевидно, что, чем больше энергия фотонов, попадающих в детектор, тем большую пространственную область занимает процесс регистрации фотона.

Следует также отметить негауссовость формы координатного спектра поглощения энергии для всех детекторов (рис. 2.27, 2.28), что связано с многократными процессами с разными сечениями взаимодействия.

2.8. Выводы:

- предложена модель для расчета параметров функции отклика детектора, основанная на расчетах по методу Монте-Карло и учитывающая радиационные потери энергии в детекторе после фотопоглощения и комптоновского рассеяния и потери энергии вследствие выхода электронов высоких энергий за пределы чувствительной области детектора;

- проанализированы вероятности полного поглощения энергии фотона в детекторе, регистрации фотона в «горбе потерь», и пике фотопотерь, регистрации в «хвосте», обусловленном выходом электронов высоких энергий с использованием предложенной модели для Si(Li), Ar, Ge, Xe детекторов и NaI(Tl) сцинтиллятора, применяемых в рентгенофлуоресцентной аппаратуре; адекватность модели Si(Li) детектора подтверждена хорошим согласием рассчитанного отклика детектора с экспериментальными данными в области энергий до 10 кэВ;

- оценена толщина мертвого слоя детектора, при которой вероятность регистрации в хвосте, обусловленном выходом электронов становится равной вероятности регистрации в хвосте, обусловленном

неполным сбором заряда, которая составила 0,1-0,2 мкм при энергии излучения 5.9 кэВ.

- методом, аналогичным используемому для детектора, рассчитан спектр излучения, рассеянного выходным окном радиоизотопного источника;

- проведена проверка модели Si(Li) детектора при его облучении радиоизотопными источниками ^{241}Am и ^{109}Cd ; результаты расчетов согласуются с экспериментальными данными для области энергий 0-25 кэВ и 40-60 кэВ при использовании источника ^{241}Am , для области энергий 0-25 кэВ и 65-88 кэВ для источника ^{109}Cd ; проверена применимость модели до энергий фотонов 2 МэВ; получено согласие для Ge детектора при его облучении излучением источника ^{60}Co , удовлетворительное согласие для облучения ксенонового детектора излучением источников ^{60}Co и ^{137}Cs ;

- проанализированы параметры области поглощения энергии фотона для позиционно чувствительного NaI(Tl) детектора. Результаты расчета сопоставлены с экспериментальными данными; получено хорошее согласие, позволяющее утверждать, что координатное разрешение таких детекторов, наряду с процессами диффузии медленных электронов, ограничивается геометрическими размерами областей поглощения фотона и диссипации энергии электронов высоких энергий.

ГЛАВА 3

Совершенствование моделей формирования измеряемого сигнала и фона

3.1. Последовательная модель описания сигнала и фона

В целях данной работы будем различать следующие виды сигнала и фона:

- физический сигнал и фон, образованный излучением образца, в который входят дискретный флуоресцентный спектр и непрерывный спектр тормозного и рассеянного излучения. Такой фон под линиями флуоресцентного излучения возникает в облучаемом образце и на деталях аппаратуры как в результате однократного и многократного когерентного и некогерентного рассеяния первичного излучения (например, [75, 101, 462]), так и тормозного излучения электронов, образующихся в веществе при его взаимодействии с рентгеновским излучением (см. также рис. 1.4);

- измеряемый (регистрируемый, аналитический) сигнал и фон: характеристический и непрерывный спектр импульсов напряжения, прошедших через систему регистрации. Такой сигнал и фон включают в себя как физический сигнал и фон, так и фон, обусловленный несовершенством аппаратуры (в том числе неидеальностью функции отклика детектора, шумами аппаратуры, неполным сбором заряда в детекторе и т.д., см. главу 2). Под измеряемым сигналом в работе будет пониматься часть регистрируемого сигнала, обусловленная регистрацией спектральной линии, за вычетом измеряемого фона, обусловленного остальным и процессами в образце и детекторе, если последнее применимо к аппаратуре.

На рис. 3.1 представлена схема формирования сигнала и фона для рентгенофлуоресцентных спектрометров с волновой дисперсией (см. рис. 1.1) и энергодисперсионных спектрометров (см. рис. 1.2).

Соответственно, в данном случае будем пользоваться выражениями (3.1) и (3.2) при описании измеряемого сигнала и фона для случая спектрометров с волновой дисперсией и энергодисперсионных спектрометров соответственно.

$$\frac{dN_{sample}}{dE} = K_{sample} \left(\frac{dN_{source}}{dE}, \bar{C}_i \right)$$

$$\frac{dN_{detector}}{dE} = K_{crystal, geomet} \left(\frac{dN_{sample}}{dE} \right) + K_{apparatur\&sample} \left(\frac{dN_{source}}{dE}, \frac{dN_{sample}}{dE} \right) \quad (3.1)$$

$$\frac{dN_{anal}}{dE} = K_{detector, discr} \left(\frac{dN_{detector}}{dE} \right)$$

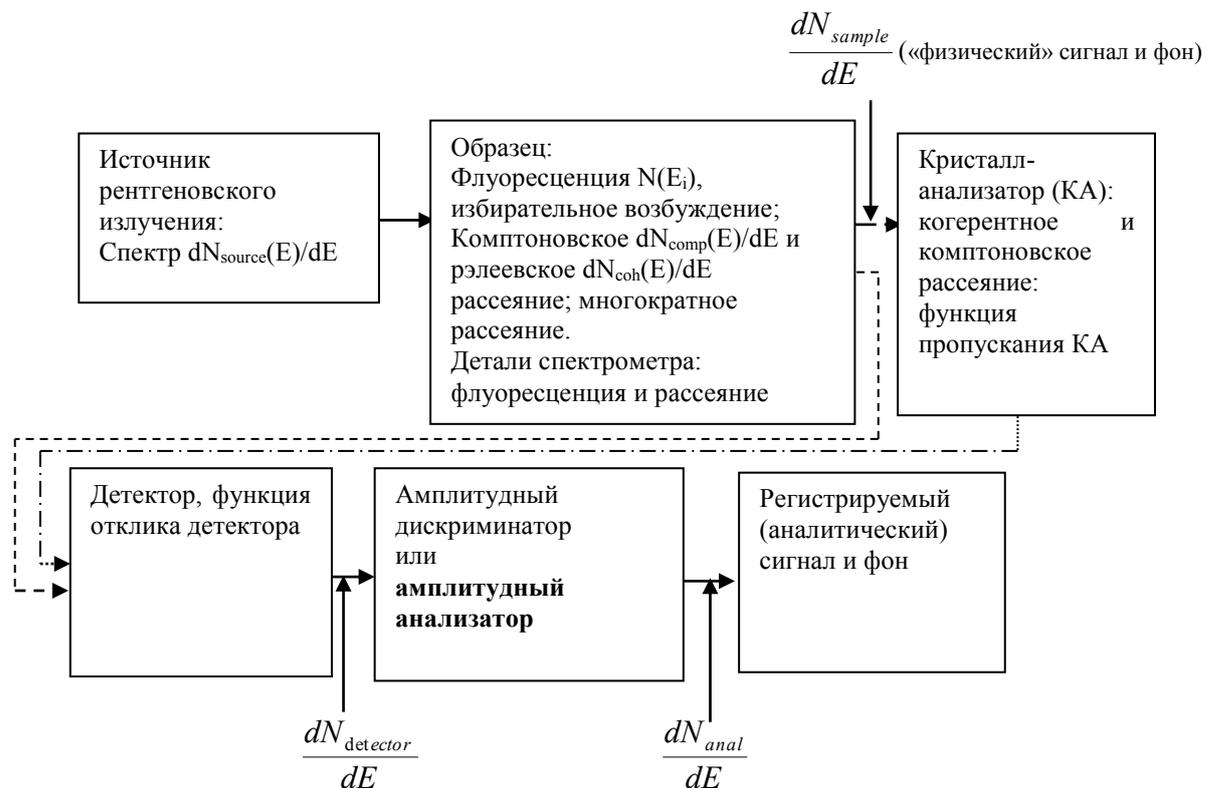


Рис. 3.1. Схемы формирования измеряемого сигнала и фона. Отличия в последовательности преобразований спектров отмечены штрих-пунктирной линией для спектрометров с волновой дисперсией и пунктирной для энергодисперсионных спектрометров.

$$\begin{aligned} \frac{dN_{detector}}{dE} &= K_{sample} \left(\frac{dN_{source}}{dE}, \bar{C}_i \right) \\ \frac{dN_{anal}}{dE} &= K_{detector, discr} \left(\frac{dN_{detector}}{dE} \right), \end{aligned} \quad (3.2)$$

где \bar{C}_i - вектор (для математического формализма) концентраций элементов в образце, $\frac{dN_{source}}{dE}$ - энергетический спектр фотонов источника рентгеновского излучения; $\frac{dN_{detector}}{dE}$ - энергетический спектр фотонов, попадающих в детектор; $\frac{dN_{anal}}{dE}$ - измеряемый (наблюдаемый) энергетический спектр импульсов, снимаемых с детектора; в случае, когда используется амплитудный дискриминатор, к наблюдению доступен $\int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dN_{anal}}{dE} dE$, где E_{min} и E_{max} - минимальная и максимальная амплитуда импульсов с детектора, на которые настроен амплитудный дискриминатор;

K_{sample} - интегральный оператор, описывающий однократные и многократные взаимодействия первичного пучка $\frac{dN_{source}}{dE}$ с образцом и включающий в себя фотопоглощение с последующей флуоресценцией, когерентное и некогерентное рассеяние, тормозное излучение возникающих в образце электронов, а также набор многократных взаимодействий;

$K_{crystal, geometr}$ - функция преобразования кристаллом-анализатором попавшего на него спектра излучения, зависящая от схемы фокусировки и применяемого кристалла; при необходимости учитывать некогерентное рассеяние на кристалле и флуоресценцию кристалла, она является интегральным оператором;

$K_{apparatur\&sample}$ - интегральный оператор, описывающий рассеяние попадающего на аппаратуру спектра излучения и флуоресценцию деталей аппаратуры; в некоторых случаях необходим учет этого оператора, например в случае наличия в аппаратуре элемента, который необходимо анализировать; реальный учет влияния этого оператора очень сложен, поэтому для чистоты эксперимента в главе 5 подбирались такие условия эксперимента, когда им можно пренебречь;

$K_{detector,discr}$ - интегральный оператор преобразования фотонов излучения, попавших в детектор, в импульсы регистрируемого напряжения.

В случае не сильно больших интенсивностей первичного излучения (не рассматриваем установки с синхротронным возбуждением спектра, а для остальной аппаратуры можно пренебречь комбинационным рассеянием и двухкратными ионизациями атомов), операторы K_{sample} , $K_{apparatur\&sample}$, $K_{cristall,geometr}$ будут линейными, т.е. $K(A+B) = K(A) + K(B)$.

Следует остановиться на применении дифференциальной терминологии к описанию спектра, типа $\frac{dN}{dE}$. Дело в том, что она нужна для математического формализма в описании спектра, собираемого в набор каналов с равной энергией, и при увеличении ширины энергетического канала в 10 раз «спектральная плотность» $\frac{dN}{dE}$ при равном количестве фотонов уменьшится в 10 раз. В случае измеряемых же данных буду пользоваться принятым обозначением $N(E)$, который в общем случае пропорционален рассчитанному $\frac{dN}{dE}$.

Оператор $K_{detector,discr}$, который будем также в работе считать линейным, является нелинейным и для стандартной аппаратуры. В общем случае он должен включать в себя поправки на мертвое время

детектора, дополнительное уширение линий и образования дополнительных линий вследствие наложения импульсов регистрации при повышенных нагрузках детектора. Указанное является следствием того, что характерные времена сбора заряда составляют 10^{-7} - 10^{-6} с для газовых детекторов, 10^{-8} - 10^{-7} с для полупроводниковых детекторов, а времена, характеризующие процессы флуоресценции и рассеяния на много порядков меньше при том, что уменьшение статистической погрешности измерения за конечное время эксперимента требует высоких нагрузок детектора.

Преимуществом рассматриваемого подхода является возможность анализа процессов в последовательности, которая соответствует этапам формирования сигнала и фона в аппаратуре, а также соблюдение единой размерности энергетических спектров для сигнала и фона, что удобно для анализа получаемых результатов.

3.2. Геометрическая модель источник – образец – детектор.

При рассмотрении процесса образования характеристического и непрерывного спектров излучения в образце будем считать, что непрерывный спектр (рассеянного и тормозного излучения образовавшихся электронов) составляет фон, обусловленный образцом, причем образец будем считать насыщенным и однородным.

Рассмотрим случай отсутствия коллиматоров, показанный на рис. 3.2, либо практически аналогичный случай коллиматоров с достаточно большим углом пропускания излучения, который характерен для установок энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа.

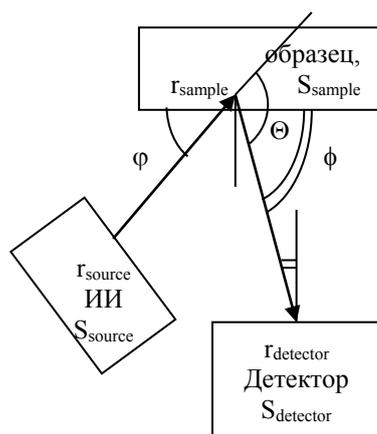


Рис. 3.2. Общая геометрия установки.

Фотон первичного излучения из источника излучения (с площадью источника S_{source} , координатой вылета фотона из источника \vec{r}_{source} , энергией E_0), попадает в образец под углом ϕ (с площадью образца S_{sample} и координатой взаимодействия \vec{r}_{sample}). При взаимодействии с веществом образца (вероятность взаимодействия K и угол рассеяния Θ между векторами $(\vec{r}_{source} - \vec{r}_{sample})$ и $(\vec{r}_{sample} - \vec{r}_{detector})$), фотон изменяет энергию — ($E_0 \rightarrow E$), вылетает из образца под углом ϕ и попадает в детектор (с координатой $\vec{r}_{detector}$ и энергией E)⁴.

В обычно используемом приближении для расчета выхода флуоресцентного излучения достаточно выбрать эффективные углы падения первичного излучения и выхода флуоресцентного излучения (глава 1).

⁴ Формально математически в эти процессы входят фотопоглощение, когерентное и комптоновское рассеяние, а также полное поглощение в результате набора процессов внутри образца.

В рамках работы интересен более сложный случай, при рассмотрении которого необходимо учитывать зависимость интенсивностей комптоновского и когерентного рассеяния от углов Θ и зависимость энергии комптоновски рассеянного фотона от угла рассеяния. Подобное усложнение, связанное с разбросом углов, становится важным при рассмотрении взаимодействия излучения с веществом образца в геометрии энергодисперсионных установок.

Энергетический спектр фотонов, попадающих в детектор, будет равен

$$\frac{dN_{\text{detector}}}{dE} = \int_{S_{\text{detector}}} dS_{\text{detector}} \int_{S_{\text{sample}}} dS_{\text{sample}} \int_{S_{\text{source}}} dS_{\text{source}} \cdot \left[\frac{\text{const} \cdot K(E_0 \rightarrow E, \Theta(\vec{r}_{\text{source}}, \vec{r}_{\text{sample}}, \vec{r}_{\text{detector}}))}{\left(\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi)} + \frac{\mu(E)}{\sin(\phi)}\right) \cdot |\vec{r}_{\text{source}} - \vec{r}_{\text{sample}}|^2 \cdot |\vec{r}_{\text{detector}} - \vec{r}_{\text{sample}}|^2} \right] \quad (3.3)$$

Для упрощения расчетов будем считать, что величины $|\vec{r}_{\text{source}} - \vec{r}_{\text{sample}}|^2$ и $|\vec{r}_{\text{detector}} - \vec{r}_{\text{sample}}|^2$ меняются слабо. Данные допущения можно считать не совсем приемлемым для некоторых установок, в которых геометрия выполнена так, чтобы максимально сблизить источник излучения, образец и детектор. Более того, если это упрощение не позволяет рассчитать спектр с достаточной точностью, возможны вычисления с помощью метода Монте-Карло по алгоритму, аналогичному использовавшемуся для расчета параметров функции отклика детектора, что сделано в нашей более поздней работе.

Тогда энергетический спектр излучения, попадающего в детектор после взаимодействия, определяемого вероятностью $K(E_0 \rightarrow E)$, будет равен

$$\frac{dN_{\text{detector}}}{dE} = \frac{\text{const}}{\left(\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{\text{eff}})} + \frac{\mu(E)}{\sin(\phi_{\text{eff}})}\right)} \cdot \int_{\Theta} K(E_0 \rightarrow E, \Theta) \frac{dG(\Theta)}{d\Theta} \cdot d\Theta, \quad (3.4)$$

где $\frac{dG(\Theta)}{d\Theta}$ - геометрический фактор, который можно рассматривать как вероятность наблюдения события при угле однократного рассеяния Θ в заданной геометрии,

$$\frac{dG(\Theta)}{d\Theta} = \int_{S_{\text{source}}} \int_{S_{\text{sample}}} \int_{S_{\text{detector}}} \Theta(\vec{r}_{\text{source}}, \vec{r}_{\text{sample}}, \vec{r}_{\text{detector}}) \cdot dS_{\text{source}} \cdot dS_{\text{sample}} \cdot dS_{\text{detector}} \quad (3.5)$$

$\Omega = \int \frac{dG(\Theta)}{d\Theta} \cdot d\Theta$ - полный телесный угол, описывающий геометрию,

$\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{\text{eff}})} + \frac{\mu(E)}{\sin(\phi_{\text{eff}})}$ - описывает поглощение первичного и выходящего

излучения в образце при некоторых эффективных углах падения φ_{eff} и выхода ϕ_{eff} .

Основное отличие выражения (3.4) от (1.51) состоит в том, что им можно описать форму линии однократного комптоновского рассеяния при большом диапазоне углов рассеяния.

3.3. Влияние геометрического фактора спектрометра на регистрируемые интенсивности процессов.

3.3.1. Коррекция выражений для описания процессов в образце

3.3.1.1. Фотопоглощение - флуоресценция

Выражения, с помощью которых описываются процессы фотопоглощения и выхода флуоресценции совпадают с некорректированным (1.54) с точностью до постоянного множителя, поскольку процессы изотропны:

$$N(E_j) = \frac{const \cdot \tau_i(E_0) \cdot \omega_i \cdot p_{ij}}{\left(\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{eff})} + \frac{\mu(E_j)}{\sin(\phi_{eff})} \right)} \cdot \Omega, \quad (3.6)$$

3.3.1.2. Когерентное рассеяние.

Выражение (1.56) преобразуются к виду:

$$N_{coh} = \frac{const}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{eff})} + \frac{\mu(E_0)}{\sin(\phi_{eff})}} \cdot \frac{N_A}{A} \cdot \int_{\Theta} \frac{d\sigma_{el_coh}}{d\Theta} \cdot F^2_{at_coh} \cdot \frac{dG(\Theta)}{d\Theta} d\Theta \quad (3.7)$$

3.3.1.3. Некогерентное (комптоновское) рассеяние

Выражение (1.61) корректируется к виду:

$$\frac{dN_{comp}(E)}{dE} = \frac{const}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{eff})} + \frac{\mu(E(\Theta))}{\sin(\phi_{eff})}} \cdot \frac{N_A}{A} \cdot \int_{\Theta} \frac{d\sigma_{KNT}(\Theta)}{d\Theta} \cdot S(\Theta, E) \cdot \frac{dG(\Theta)}{d\Theta} d\Theta. \quad (3.8)$$

Необходимо отметить, что для данного случая $\Theta = \Theta(E_0, E)$

3.3.1.4. Тормозное излучение электронов, возникающих в образце.

Для описания тормозных спектров, с неизбежными упрощениями процессов, приводящих к их возникновению, зададимся ограничениями. Так как в рассматриваемом диапазоне энергий (выше 2 кэВ) длина свободного пробега электрона в веществе меньше, чем длина пробега рентгеновского фотона, будем считать, что процесс генерации тормозного излучения происходит в той же точке, что и взаимодействие, приводящее к появлению электрона. Так как направление движения электронов очень быстро хаотизируется, их поток также примем изотропным (это является не совсем корректным для высокоэнергетической части тормозного спектра).

В этом случае выражение (1.11) для спектрального состава тормозного излучения упрощается, потому что не нужно учитывать

обратное рассеяние электронов и поглощение излучения в веществе и окне рентгеновской трубки:

$$\frac{dN_{Kr}}{d\lambda}(E_{el}) = 7.52 \cdot 10^{-5} \cdot Z \cdot \left(\frac{1}{\lambda_e} - \frac{1}{\lambda}\right) \cdot \frac{1}{\lambda} \cdot B(\lambda) \cdot \frac{T}{L}, \quad [\text{фотон}/(\text{электрон} \cdot \text{ангстрем})], \quad (3.9)$$

где длина волны λ_e - коротковолновая граница тормозного спектра электрона с энергией E_{el} , λ - длина волны тормозного излучения.

Закон Крамерса для рассматриваемых электронов можно рассматривать в виде:

$$\frac{dN_{Kr}}{dE} = \frac{dN_{Kr}}{d\lambda} \cdot \frac{d\lambda}{dE},$$

$$\left| \begin{array}{l} \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{el}) = 0.60 \cdot 10^{-5} \cdot Z \cdot \frac{1}{E} \cdot (E_{el} - E) \cdot B(E) \cdot \frac{T}{L} \text{ при } E < E_{el}, \\ \frac{dN_{Kr}}{dE} = 0 \quad \text{при } E > E_{el} \end{array} \right. \quad (3.10)$$

Вероятность тормозного излучения фотоэлектронов равна произведению вероятности $P(E_0 \rightarrow E_{ph_el})$ появления фотоэлектрона на вероятность $P(E_{ph_el} \rightarrow E)$ появления тормозного спектра излучения с энергией E :

$$K_{br_photo_el}(E_0 \rightarrow E) = P(E_0 \rightarrow E_{ph_el}) \cdot P(E_{ph_el} \rightarrow E)$$

где

$$P(E_0 \rightarrow E_{ph_el} = E_0 - E_{eg_i}) = \tau_i(E_0)$$

$$P(E_{ph_el} \rightarrow E) = \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{ph_el})$$

Спектральное распределение тормозного излучения фотоэлектронов будет описываться выражением:

$$\frac{dN_{br_photo_el}(E)}{dE} = \frac{const \cdot \tau_i(E_0) \cdot \Omega}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\phi_{eff})} + \frac{\mu(E)}{\sin(\phi_{eff})}} \cdot \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{ph_el}) \quad (3.11)$$

Для спектрального распределения тормозного излучения Оже электронов получается аналогичное выражение:

$$\frac{dN_{br_auger}}{dE} = \frac{const \cdot \tau_i(E_0)(1 - \omega_K) \cdot \Omega}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{eff})} + \frac{\mu(E)}{\sin(\phi_{eff})}} \cdot \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{auger_el}) \quad (3.12)$$

Выражения (3.11) и (3.12) отличаются от рассмотренных в работе [258] геометрическим фактором Ω .

Вероятность тормозного излучения Комптоновских электронов в образце может быть получена по формуле:

$$K_{br_comp_el}(E_0 \rightarrow E) = P(E_0 \rightarrow E_{comp_el}(\Theta')) \cdot P(E_{comp_el}(\Theta') \rightarrow E).$$

В данном случае угол комптоновского рассеяния фотона - Θ' , а угол выхода тормозного излучения электрона отдачи - Θ .

Если принять, что комптоновское взаимодействие охватывает в основном слабо связанные внешние электроны атома, тогда энергия электрона отдачи будет равна:

$$E_{comp_el}(\Theta') = E_0 - E_s(\Theta') = E_0 \frac{k(1 - \cos(\Theta'))}{1 + k(1 - \cos(\Theta'))} \quad (3.13)$$

Энергетическое распределение электронов по энергии будет равно

$$P(E_0 \rightarrow E_{comp_el}(\Theta')) = \frac{dN_{comp_el}}{dE_{comp_el}} = \frac{N_A}{A} \frac{d\sigma_{comp_am}}{d\Theta'} \cdot \frac{1}{\frac{dE_{comp_el}}{d\Theta'}} =$$

$$\frac{N_A}{A} \frac{d\sigma_{KNT} \cdot S}{d\Omega} \cdot \frac{2 \cdot \pi \cdot \sin(\Theta')}{\frac{dE_{comp_el}}{d\Theta'}} ,$$

$$\begin{aligned} P(E_0 \rightarrow E_{comp_el}) &= \frac{dN_{comp_el}}{dE_{comp_el}} = \\ &= \frac{N_A}{A} \frac{d\sigma_{KNT} \cdot F_{nk}}{d\Omega'} \cdot \frac{2 \cdot \pi}{E_0 \cdot k} \cdot \frac{1}{\left(\frac{1}{1 + k \cdot (1 - \cos(\Theta'))} - \frac{k \cdot (1 - \cos(\Theta'))}{(1 + k \cdot (1 - \cos(\Theta')))^2} \right)} \end{aligned} \quad (3.14)$$

$$P(E_{comp_el} \rightarrow E) = \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{comp_el})$$

$$\frac{dN_{br_comp_el}(E)}{dE} = \frac{const}{\frac{\mu(E_0)}{\sin(\phi_{eff})} + \frac{\mu(E(\Theta))}{\sin(\phi_{eff})}} \cdot \int_0^{E_{comp_el_max}} \frac{dN_{comp_el}}{dE_{comp_el}} \cdot \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{comp_el}) \cdot dE_{comp_el} \quad (3.15)$$

В случае непрерывного спектра первичного излучения выражения (3.6-3.8), (3.11), (3.12), (3.15) интегрируются по первичному спектру излучения.

3.3.2. Оценка необходимости учета геометрического фактора

Оценим условия, при которых необходимо учитывать геометрический фактор. На рис. 3.3. приведены расчетные спектры работы Фернандеза [75] для однократно и двукратно рассеянного излучения с энергией 59.6 кэВ при различных углах рассеяния Θ , с учетом уширения линии при рассеянии и воде в качестве образца.

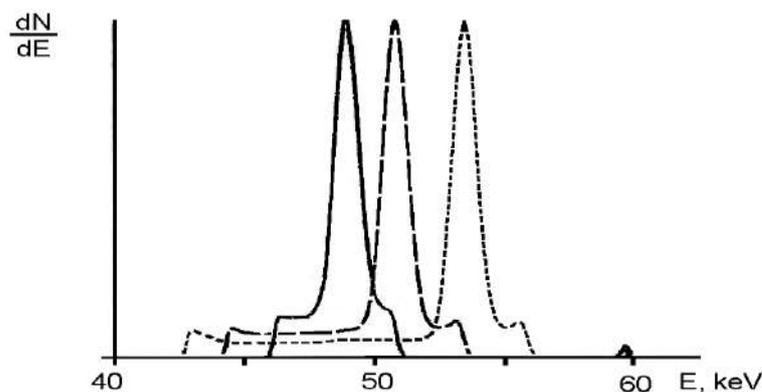


Рис. 3.3. Однократно и двукратно комптоновски рассеянное излучение, согласно работе [75]. Углы рассеяния – 90° (точечная линия), 120° (пунктирная линия), 150° (непрерывная линия).

Из рис.3.3 видно, что при рассмотренных условиях учет комптоновского рассеяния по выражению (1.59) и уширения линии по формуле Вентцеля адекватен при разбросе углов рассеяния 5-10 градусов (при необходимой точности описания спектров), соответствующей условиям стационарных спектрометров с волновой дисперсией и существенными расстояниями от мощной рентгеновской трубки до образца и от образца до спектрометрического канала и детектора. При бóльшем диапазоне углов рассеяния и меньших расстояниях данное условие не выполняется, и необходимо использовать выражения, описанные выше, в противном случае становится невозможным описание формы линии комптоновского рассеяния. Последние рассуждения относятся к спектрометрам с полупроводниковым детектором и радиоизотопным источником рентгеновского излучения. Дальнейшие исследования спектров, рассчитанных с помощью метода Монте-Карло, также находятся за рамками обсуждаемых результатов данной работы.

Формула Вентцеля может быть преобразована к виду

$$\delta E = \sqrt{E_{cs} \cdot \Delta E} \quad (3.16)$$

Энергия ΔE , передаваемая электрону отдачи, пропорциональна квадрату начальной энергии фотона. Принимая энергию связи E_{cs} постоянной, можно получить, что полуширина линии комптоновского рассеяния пропорциональна энергии фотона, а, следовательно, отношение полуширины линии рассеяния к энергии фотона – константой. Выводы, приведенные выше для энергии излучения 59,6 кэВ справедливы и для более низких энергий первичного излучения.

3.3.3. Расчет геометрического фактора установки.

Геометрия энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного спектрометра, для которого приводятся расчеты и эксперименты, приведена на рис. 3.4 а). На рисунке 3.4 б) показан рассчитанный геометрический фактор $\frac{dG(\Theta)}{d\Theta}$ для данной геометрии по формуле (3.5).

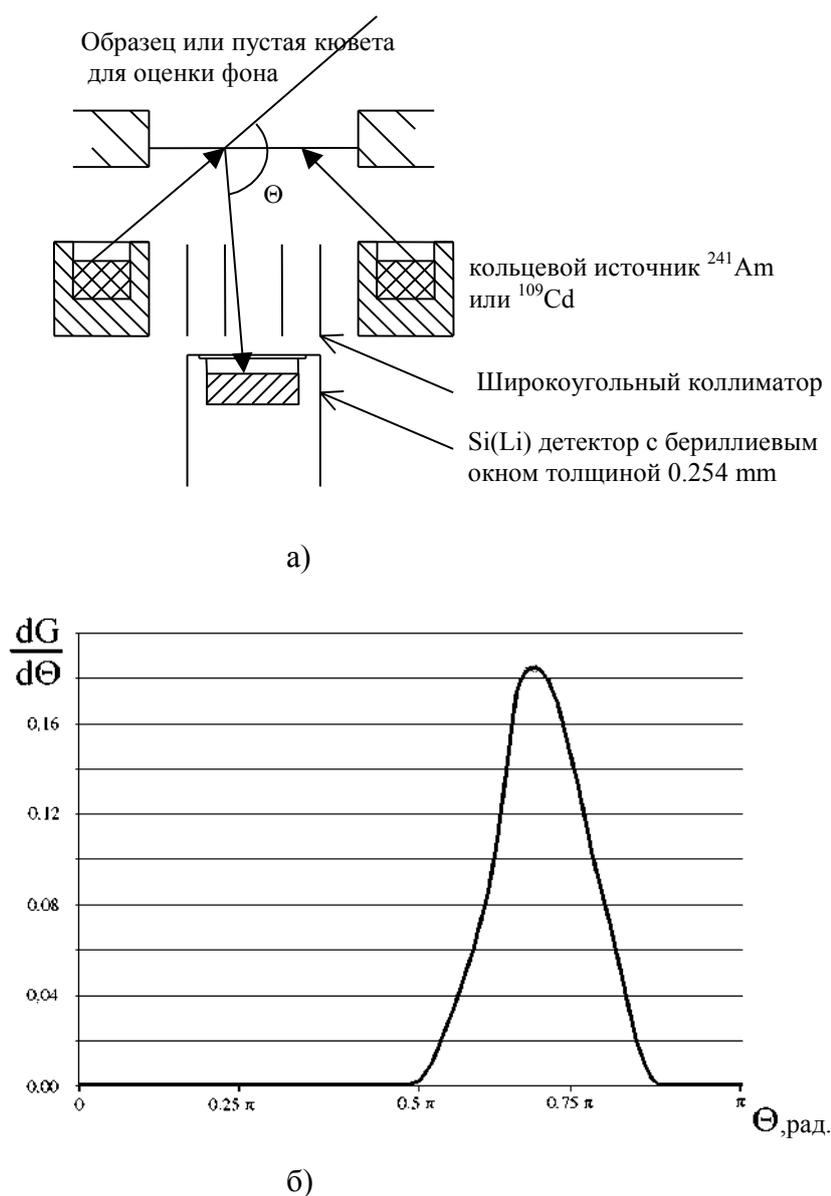


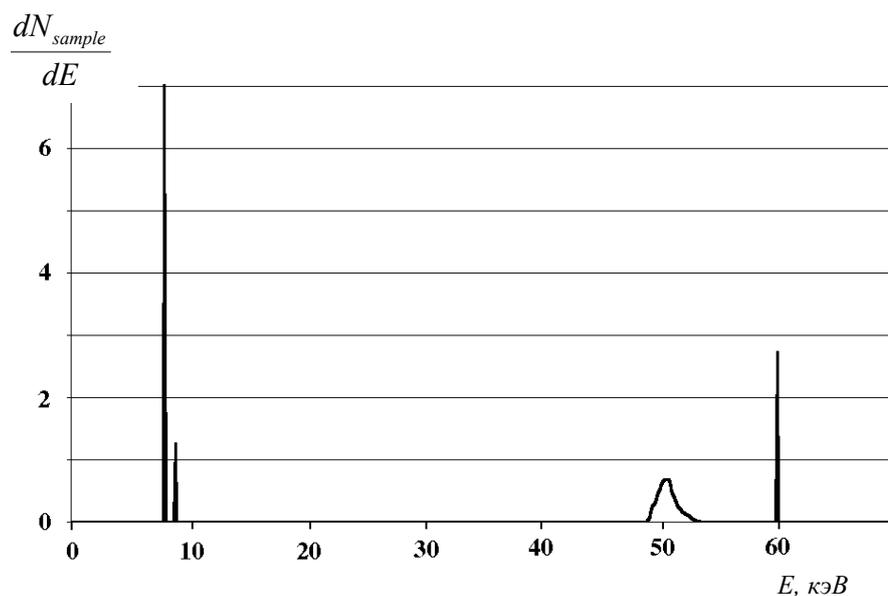
Рис. 3.4. Геометрия установки, на которой производились исследования (а), геометрический фактор $\frac{dG}{d\Theta}$ данной установки, рассчитанный численно (б).

Из рисунков следует, что существуют "разрешенная" и "запрещенная" геометрией область углов взаимодействия Θ , при которых однократно рассеянное излучение в детектор либо попадает, либо не попадает, а характерный разброс углов рассеяния - около 60° , что требует применения рассматриваемой геометрической модели.

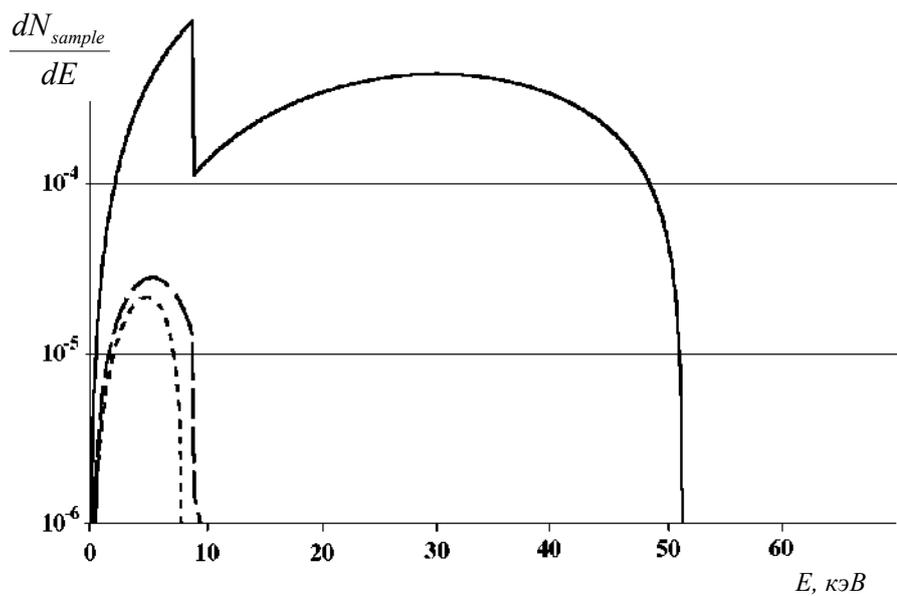
3.4. Спектр, возникающий в образце при моноэнергетическом первичном излучении.

На рис. 3.5а и 3.5б показаны результаты расчета спектра излучения медного образца («физический» сигнал и фон), возникающего при его облучении излучением с энергией 59,6 кэВ – основной линии источника ^{241}Am : представлены интенсивности K_α и K_β флуоресценции, рассчитанные по (3.6), интенсивности когерентного и комптоновского рассеяния (3.7), (3.8) соответственно, интенсивности тормозного излучения фото, Оже- и комптоновских электронов (3.11), (3.12), (3.15). Для сопоставления результатов расчетов моноэнергетического и непрерывного спектра ширина характеристических линий и линии когерентного рассеяния взяты равными 0.1 кэВ.

На рис 3.5б хорошо видны К-скачки поглощения в спектре тормозного излучения фото и комптоновских электронов, обусловленные изменением коэффициента поглощения при выходе излучения из образца. Энергия Оже электронов при однокомпонентном образце не может быть больше энергии К- края поглощения, поэтому К-скачок для тормозного излучения Оже электронов отсутствует, хотя может наблюдаться для многокомпонентных образцов.



а)



б)

Рис. 3.5. Энергетический спектр излучения («физический» сигнал и фон), возникающего при облучении Cu образца излучением с энергией 59,6 кэВ. Разрешение по энергии - 0,1 кэВ.

а) Cu K_{α} , Cu K_{β} линии (энергии 8 и 8,8 кэВ), пики однократного релеевского (энергия 59,6 кэВ) и комптоновского (энергия 48 – 59,6 кэВ) рассеяния;

б) тормозное излучение фото (непрерывная линия), Оже (точечная линия) и комптоновских (прерывистая линия) электронов.

3.5. Расчет и сравнение с экспериментальными данными измеряемого спектра при использовании источников рентгеновского излучения ^{109}Cd и ^{241}Am .

Будем считать, что геометрия установки такова, что возвратом излучения из объема, расположенного за кюветой в детектор можно пренебречь. Используем данный факт, считая фоном, обусловленным рассеянием на частях аппаратуры, фон, снятый в условиях отсутствия пробы.

На рис. 3.6 проведено сопоставление расчетных и экспериментальных данных установки EDXRF с источниками ^{109}Cd и ^{241}Am для медного образца. Расчет измеряемого спектра $N(E)$ выполнен по выражению (2.12), где спектр излучения $N_0(E_0)$, попадающего в детектор, рассчитывается как сумма спектров флуоресценции (3.6), когерентного рассеяния (3.7), комптоновского рассеяния (3.8), тормозного излучения фотоэлектронов (3.11), Оже электронов (3.12), электронов отдачи (3.15), с учетом искажения спектра первичного излучения, вносимого окном источника излучения, и с учетом влияния детектора, которое рассматривается в главе 2.

Как видно из рис. 3.6, данные эксперимента удовлетворительно согласуются с данными расчетов при определенных энергиях излучения.

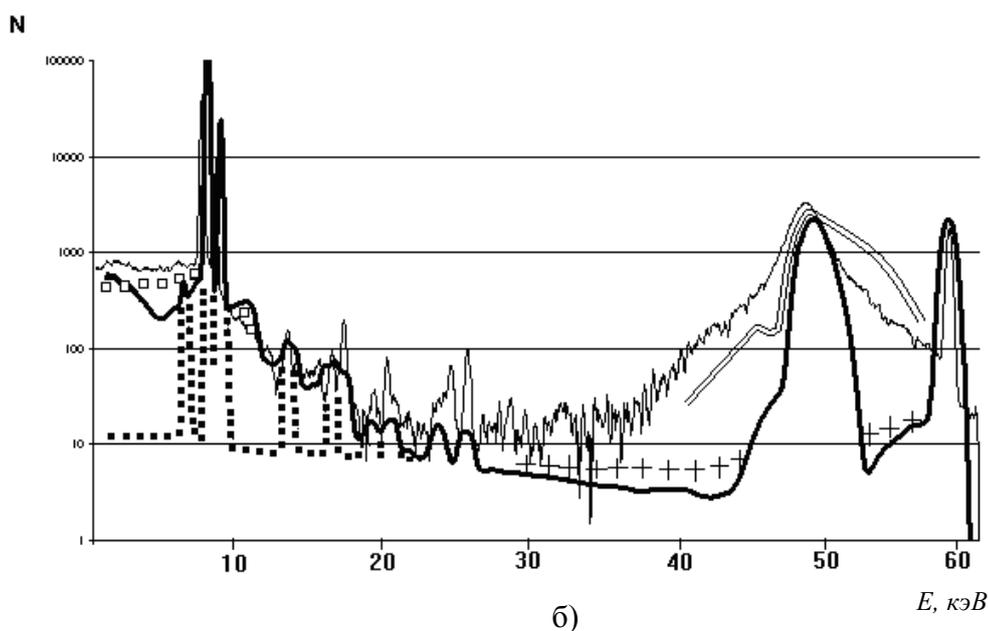
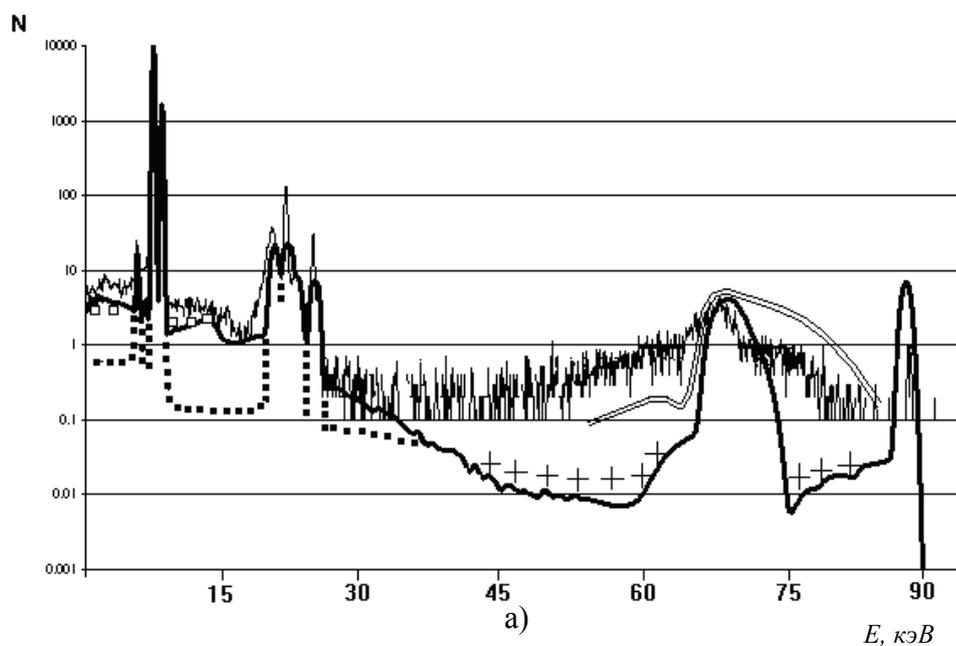


Рис. 3.6. Измеряемый спектр, рассчитанный (толстая линия – сечение комптоновского рассеяния в детекторе по (1.38), нулевая толщина мертвого слоя), квадраты – отличия в расчетах при использовании формулы (1.41), кресты – отличия в расчетах при толщине мертвого слоя 1 мкм, и экспериментальный (тонкая линия) наблюдаемый при облучении Си излучением источников ^{109}Cd (а) и ^{241}Am (б). Точечная линия – низкоэнергетическая часть фона, обусловленная всеми рассматриваемыми процессами, за исключением образования «горба потерь» вследствие комптоновского рассеяния излучения с высокой энергией в детекторе. Двойная линия в районе пика комптоновского рассеяния получена при моделировании спектра образца методом Монте-Карло.

На рис. 3.6. в низкоэнергетической части спектра точечной линией отмечен сигнал и фон, обусловленный всеми процессами (рассеянием, тормозным излучением электронов, неидеальностью функции отклика детектора, связанной с выходом электронов высоких энергий за пределы чувствительной области детектора), за исключением «горба потерь», связанного с выходом из детектора излучения после комптоновского рассеяния.

Приведенные данные расчетов показывают, что более 90% фона в области энергий 1 – 12 кэВ при использовании 5 мм Si(Li) детектора и радиоактивного источника ^{241}Am обусловлено рассеянием первичного излучения в образце с последующим его комптоновским рассеянием в детекторе и образованием «горба потерь». Этот процесс также является определяющим (порядка 90 % фона) в области 1-20 кэВ при использовании источника ^{109}Cd , имеющего линию с энергией 88 кэВ. Как было отмечено в главе 3, в результате многократного комптоновского рассеяния в детекторе образуется дополнительный «хвост» горба потерь. Рассмотренный процесс также является значимым с точки зрения образования фона при использовании источников ^{241}Am (область энергий 12-20 кэВ) и ^{109}Cd (область энергий 20-35 кэВ).

Если рассматривать более тонкий кремниевый детектор, порядка 0,5 мм, то в случае источника ^{241}Am в области «горба потерь» его вклад в фон составит около 80%.

Более точный расчет спектра, возникающего в результате однократного и многократного комптоновского рассеяния в образце также возможен с помощью метода Монте-Карло по методике, аналогичной для детекторов, при этом ошибка описания фона в этой области энергий становится менее 20%.

Стоит отметить, что в случае использования радиоактивного источника ^{241}Am площади зарегистрированных пиков рассеяния линии с энергией 60 кэВ и низкоэнергетического «горба потерь» будут примерно равны, что связано с примерно равной вероятностью регистрации излучения с энергией 50-60 кэВ в пике полного поглощения и «горбе потерь».

В случае же линии 88 кэВ источника ^{109}Cd площадь регистрируемых линий рассеяния в области энергий 68-88 кэВ почти на порядок меньше (см. рис. 3.5), чем площадь регистрирующегося из-за этих линий «горба потерь» в области до 35 кэВ.

Неточности в описании фона в областях энергий 40-45 кэВ и 52-58 кэВ в случае использования источника излучения ^{241}Am и 50-63 кэВ и 75-86 кэВ в случае ^{109}Cd объясняются отсутствием учета двукратного комптоновского рассеяния [75] в применяемой модели. Дальнейшее развитие расчетов возможно также путем применения метода Монте-Карло, однако точность таких расчетов будет ограничена точностью применяемых дифференциальных сечений взаимодействия.

3.6. Модель рентгеновской трубки с заземленным катодом.

Существенную роль при образовании фона играет тормозное излучение рентгеновской трубки, рассеянное образцом, поэтому факт смещения максимума спектра в длинноволновую область при переходе к трубкам с заземленным катодом и окном трубки требует объяснения.

При описании спектрального состава излучения рентгеновской трубки с заземленным катодом следует иметь в виду, что при высоком потенциале на аноде трубки в формировании первичного излучения участвуют не только электроны катодного пучка, но и обратнорассеянные электроны, возвращаемые полем на поверхность анода. Дополнительная самофокусировка потока обратнорассеянных

электронов в область генерации излучения первичным пучком является следствием конструкции трубки.

Обозначим предложенное в [34] спектральное распределение, включающее тормозную и характеристическую составляющие излучения рентгеновской трубки с заземленным анодом (отнесенное к числу электронов катодного пучка), как

$$N(\lambda, E_0, Z), \quad (3.17)$$

где E_0 – энергия электронов катодного пучка;

Z – атомный номер вещества анода;

λ – длина волны спектральной интенсивности.

Тогда спектральная интенсивность излучения, обусловленного возвратом на анод обратнорассеянных электронов, определяется интегрированием выражения (3.17) по энергиям этих электронов с учетом их распределения $\frac{dn}{dE}$:

$$N_1(\lambda, E_0, Z) = \int_{E_\lambda}^{E_0} N(\lambda, E, Z) \cdot \frac{dn}{dE} \cdot dE, \quad (3.18)$$

где E – энергия обратно рассеянных электронов в энергетическом интервале dE ; E_λ – их минимальная энергия, достаточная для создания спектральной интенсивности с длиной волны λ .

Выражение для энергетического распределения обратнорассеянных электронов, учитывающее вклад первой и второй их генерации (поскольку из результатов расчетов видно, что последующими поколениями можно пренебречь), определяется формулой:

$$\frac{dn}{dE} = \frac{n_0}{E_0} \left[\Phi(E, E_0, Z) + \int_E^{E_0} \frac{1}{E_1} \Phi(E_1, E_0, Z) \Phi(E, E_1, Z) dE_1 \right] \quad (3.19)$$

где интегрирование в квадратных скобках осуществляется по энергетическому распределению электронов первой генерации.

Таким образом, спектральное распределение излучения рентгеновских трубок с заземленным катодом определяется суммированием распределений, найденных по выражениям (3.17) и (3.18).

Сопоставление расчетных и экспериментальных данных для тормозного излучения рентгеновской трубки OEG-75H (используется в современных спектрометрах ARL) приведено на рис. 3.7. (на рисунках максимумы распределений, полученных с учетом и без учета влияния обратно рассеянных электронов, нормированы на 100%).

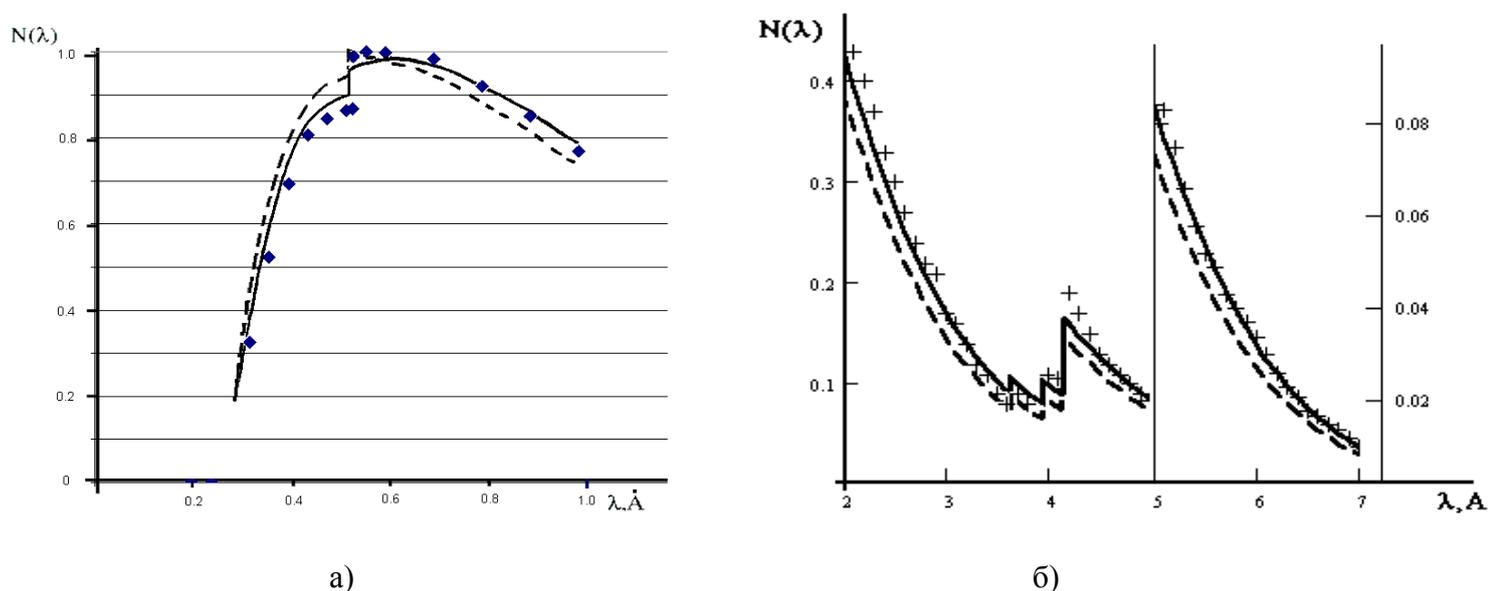


Рис. 3.7. Спектральное распределение тормозного излучения рентгеновской трубки OEG-75H с родиевым анодом (напряжение 45 кВ, толщина бериллиевого окна 75 мкм, угол выхода рентгеновского излучения $\psi = 90^\circ$). Расчет выполнен с учетом вклада обратно рассеянных электронов (сплошная кривая) и без учета этого вклада (пунктирная кривая). Максимумы сравниваемых распределений нормированы на 100. Точки – данные работы [46]

Результаты расчетов свидетельствуют об изменении формы спектрального распределения тормозного излучения и сдвигу максимума

спектрального распределения. Пунктиром нанесено спектральное распределение, обусловленное непосредственным торможением электронов катодного пучка.

Функция $V(\lambda)$ в выражении (1.13) масштабирована для того, чтобы сохранить положение максимума по длинам волн в соответствии с выражением $\lambda_{\max} = 2\lambda_0$. В принципе возможно изменение этой функции, чтобы более простым способом описать изменение спектрального состава излучения трубки с заземленным анодом и заземленным катодом.

На рис. 3.7 наблюдается вполне удовлетворительное согласие экспериментальных и расчетных зависимостей, что подтверждает правильность утверждения о существенном вкладе обратно рассеянных электронов в формирование фокальной интенсивности излучения рентгеновских трубок с заземленным катодом.

Что касается дальнейшей судьбы рассеянных электронов для рентгеновских трубок с заземленным анодом, то проведенная нами оценка для рентгеновской трубки БХВ–6 показала, что порядка 50% электронов попадают в окно рентгеновской трубки, а остальные – в анод вне фокуса трубки. Оценка интенсивности тормозного излучения, сильно зависящего от атомного номера мишени, в бериллиевом окне трубки по формуле, например, (1.12) позволяет пренебречь этим процессом по сравнению с процессом торможения в аноде трубки.

Формально учет изменения спектра при смене точки заземления и заземлении окна для дальнейших расчетов может быть введен путем изменения поправок $V(\lambda)$, либо выбором поправки на поглощение, однако следует помнить, что причиной данного изменения спектра является довозбуждение анода пучком рассеянных и притянутых обратно электронов.

3.7. Расчет сигнала и фона при возбуждении флуоресценции излучением рентгеновских трубок и использовании Si(Li) детектора.

3.7.1. Сравнение физического сигнала и фона в случае использования рентгеновских трубок с заземленным анодом и заземленным катодом.

Преобразуя уравнения (1.13) к виду энергетического спектра, для спектрального распределения тормозного излучения трубки с заземленным анодом получаем:

$$\left| \begin{array}{l} \frac{dN_{Kr}}{dE}(E_{el}) = 0.60 \cdot 10^{-5} \cdot Z \cdot \frac{1}{E} \cdot (E_{el} - E) \cdot B(E) \cdot \frac{T}{L} f(\chi) R \frac{1}{4\pi} W_a \text{ при } E < E_{el}, \\ \frac{dN_{Kr}}{dE} = 0 \quad \text{при } E > E_{el} \end{array} \right. \quad (3.20)$$

для спектрального состава характеристического излучения используем выражения (1.20), при этом в расчетах ширину характеристических линий примем равной 0.1 кэВ.

Для описания энергетического спектра рентгеновской трубки с заземленным катодом используем выражение

$$\frac{dN_1(E, E_0, Z)}{dE} = \frac{dN(E, E_0, Z)}{dE} + \int_{E_\lambda}^{E_0} \frac{dN(E, E_0, Z)}{dE} \cdot \frac{dn}{dE} \cdot dE, \quad (3.21)$$

которое аналогично выражению (3.18), где $\frac{dN(E, E_0, Z)}{dE}$ -

энергетическое распределение излучения (равное сумме тормозного и характеристического компонентов) для рентгеновской трубки с заземленным анодом.

На рис. 3.8 показан энергетический спектр излучения, рассчитанный для обеих моделей трубок. Как видно из рис. 3.8, за исключением небольшого изменения интенсивности тормозного излучения ($\cong 10-20\%$) и небольшого сдвига спектрального распределения в низкоэнергетическую область, изменение модели трубки (заземленный

анод либо катод) практически не меняет контрастность (в пределах точности дальнейших расчетов). Поэтому для дальнейших расчетов контрастности в случае энергодисперсионного спектрометра будет использоваться модель трубки (3.20) с заземленным анодом.

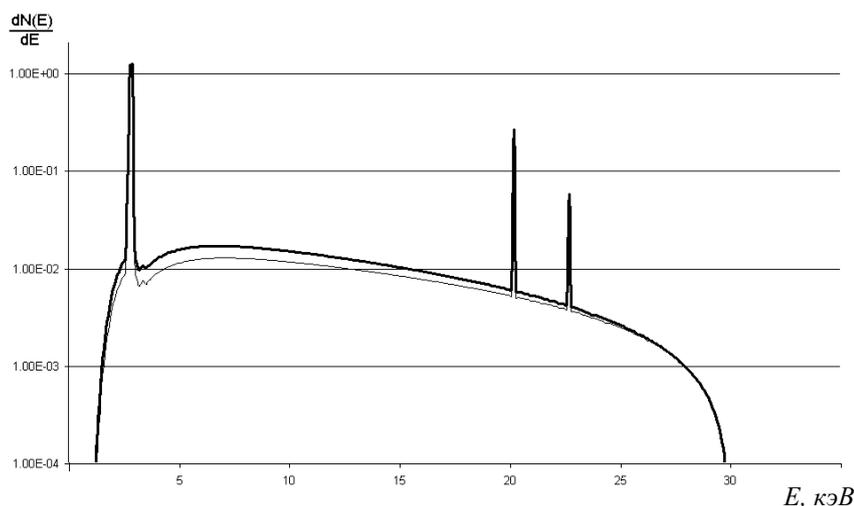


Рис. 3.8. Спектральный состав излучения трубки с заземленным анодом (тонкая линия) и заземленным катодом (толстая линия). Толщина окна трубки – 100 мкм, анод трубки – Rh, напряжение на трубке – 30 кВ. Энергетическое разрешение по линиям – 100 эВ (линии L-серии Rh при таком разрешении не разделяются)

3.7.2. Расчет физического сигнала и фона при использовании рентгеновской трубки.

Рассмотрим, как будет изменяться спектральный состав «физического» сигнала и фона для Ti образца при использовании Rh рентгеновской трубки при толщине выходного бериллиевого окна 100 мкм. (рис. 3.9). На рисунке показаны присутствующие в «физическом» спектре линии Ti (4,5 и 5 кэВ), непрерывный спектр под линиями излучения, обусловленный когерентно и некогерентно рассеянным образцом тормозным излучением рентгеновской трубки и тормозным

излучением электронов, возникающих в образце, когерентно (20 и 23 кэВ) и некогерентно рассеянные (18 и 21 кэВ) характеристические линии Rh рентгеновской трубки. Отличие фона справа и слева от линий Ti объясняется К – скачком поглощения Ti.

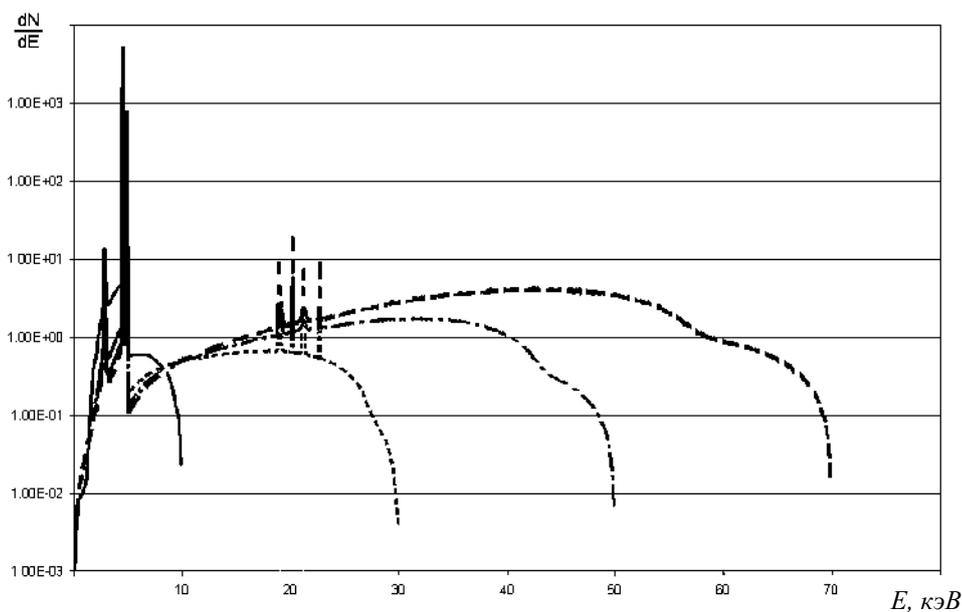


Рис. 3.9. «Физический» сигнал и фон (расчет). Источник излучения – Rh рентгеновская трубка с заземленным анодом, напряжения на трубке 10 кВ (непрерывная линия), 30 кВ (точечная линия), 50 кВ (штрих-пунктирная линия), 70 кВ (пунктирная линия), Ti образец, интенсивность спектра нормирована по интенсивности линии Ti. Энергетическое разрешение, принятое в расчете – 100 эВ.

Таблица 3.1.

Отношение «физический» сигнал (по K_{α} линии) /фон на линии Ti в зависимости от напряжения на рентгеновской трубке U . Условия совпадают с приведенными на рис. 3.9.

U, кВ	Отношение «физический сигнал»/«физический фон»	
	со стороны высоких энергий (5,5 кэВ)	со стороны низких энергий (4 кэВ)
10	1050	9071
20	2700	20500
30	3700	27000
40	4800	33000
50	5900	38000
60	6700	43000
70	7600	48000

Согласно рис. 3.9 и табл. 3.1 для Ti образца, с ростом напряжения на трубке, контрастность «физического» спектра сначала существенно увеличивается, а, начиная с напряжения на трубке 30 кВ, растет медленно. Отметим, что в аппаратуре могут происходить процессы (дальнейшие преобразования в измеряемый сигнал и фон, они рассматриваются ниже), которые могут существенно изменять поведение контрастности.

3.7.3. Оценка роли тормозного излучения электронов в формировании физического фона.

Рассмотрим, какую роль играет тормозное излучение электронов в формировании сигнала и фона на Ti образце при использовании Rh

рентгеновской трубки с выходным бериллиевым окном толщиной 100 мкм (рис. 3.10).

Из рисунка видно, что в области линии Ti «физический» фон в основном обусловлен рассеянием тормозного излучения рентгеновской трубки, а фон, обусловленный тормозным излучением электронов, возникающих в образце, будет доминировать при данных условиях при энергиях менее 1,5 кэВ. Это объясняется почти полным поглощением первичного излучения трубки с малой энергией в ее выходном бериллиевом окне (1.15).

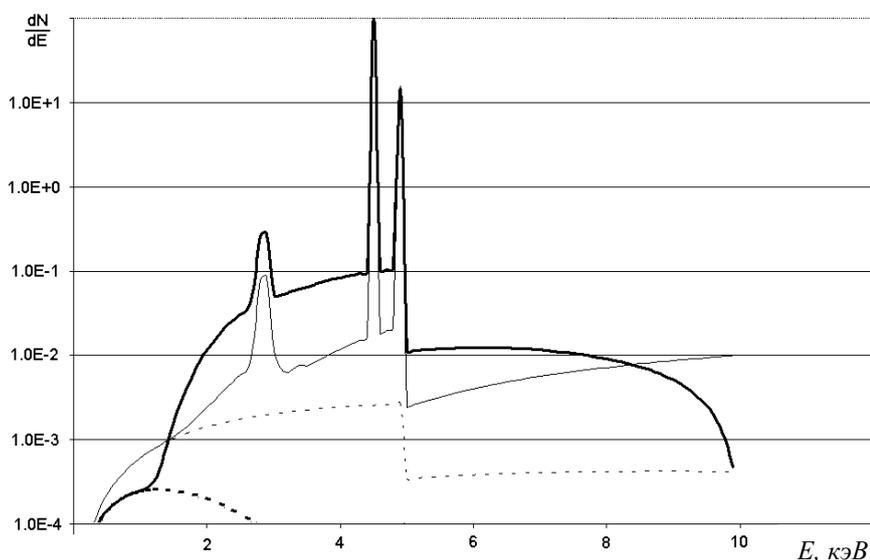


Рис. 3.10. «Физический» сигнал и фон в области энергий 0-10 кэВ (расчет). Источник излучения – Rh рентгеновская трубка с заземленным анодом, напряжения на трубке 10 (толстая непрерывная линия) и 50 кВ (тонкая непрерывная линия), Ti образец, интенсивность спектра нормирована по интенсивности линии Ti . Энергетическое разрешение, принятое в расчете – 100 эВ. Отмечена часть фона, обусловленная тормозным излучением электронов, возникших в образце при напряжении на трубке 10 кВ и 50 кВ (тонкая и толстая точечная линия соответственно).

Из рис. 3.10. видно, что областью спектра, при которой роль фото и Оже электронов в формировании фона будет важна при использовании рентгеновской трубки, является область, в которой выходное бериллиевое окно трубки поглощает практически все тормозное излучение. Рассмотрим спектр в этой области (линия Na).

На рис. 3.11. представлены результаты расчета «физического» сигнала и фона Na пробы, облучаемой Rh рентгеновской трубкой при напряжении 10 и 50 кВ. Из рисунка видно, что в районе линии Na должен быть скачок фона справа от линии излучения (по К-краю поглощения Na), что может свидетельствовать о наличии фона, обусловленного тормозным излучением электронов.

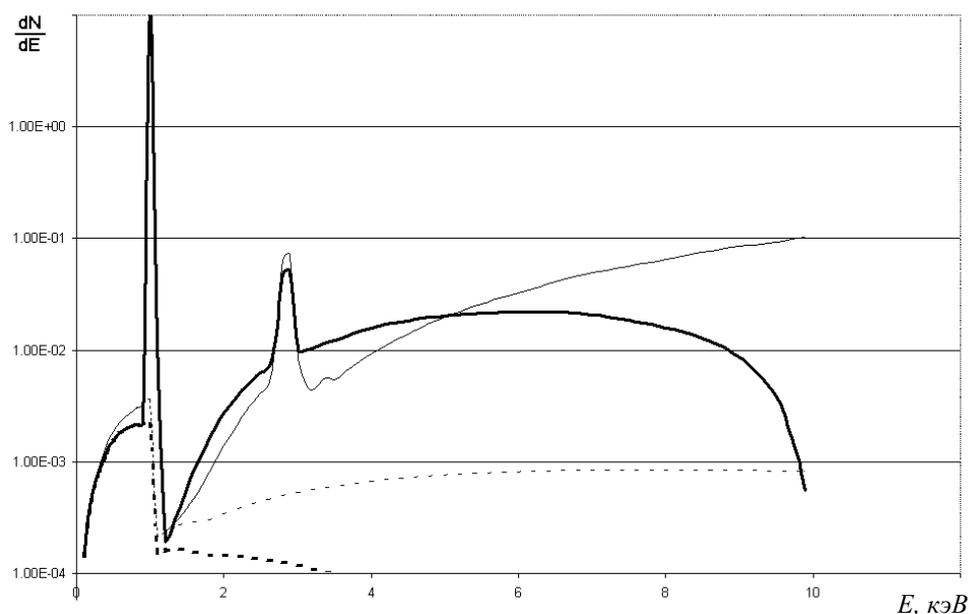


Рис. 3.11. Физический сигнал и фон (расчет). Трубка – Rh окно 75 мкм, образец - Na. Ширина линии принята равной 100 эВ. Спектры нормированы по интенсивности линии Na. Напряжения на трубке 10 (толстая непрерывная линия) и 50 кВ (тонкая непрерывная линия). Отмечена часть фона, обусловленная тормозным излучением электронов, возникших в образце при напряжении на трубке 10 кВ и 50 кВ (тонкая и толстая пунктирная линия соответственно).

На рис. 3.12. представлена расчетная зависимость «физического» фона на линии Na от напряжения на рентгеновской трубке для различных образцов, не содержащих Na. Условия расчетов взяты соответствующими аппарату CPM-25M. (Трубка Rh, выходное окно трубки 300 мкм, модель трубки – заземленный катод).

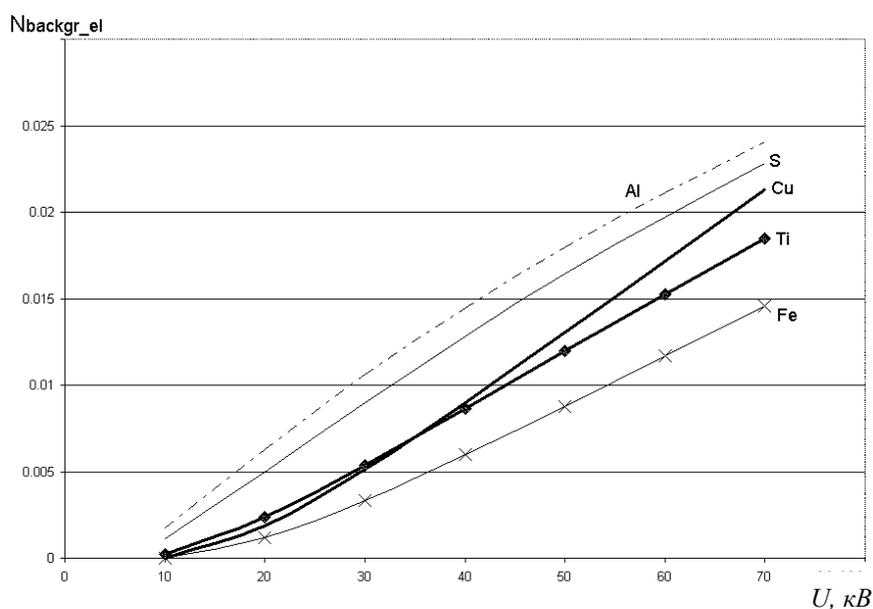


Рис. 3.12. Расчетная зависимость «физического» фона, обусловленного тормозным излучением электронов N_{backgr_el} на линии Na от напряжения на рентгеновской трубке для набора одноэлементных проб.

Следует отметить, что, несмотря на улучшение методики измерения, мы не смогли получить подобную зависимость для аппаратуры с волновой дисперсией (глава 5). Скорее всего, это следствие одновременно несовершенства как методики измерений, так и методики расчетов. Так, например, в наших расчетах не учитывается дрейф электронов к поверхности при их торможении, а также торможение электронов в слабом вакууме после их выхода из образца и стенок

защитной камеры спектрометра. В любом случае вопрос о роли фото, Оже и комптоновских электронов в формировании фона на сегодняшний день остается открытым.

3.8. Оценка контрастности при изменениях параметров регистрации для энергодисперсионного спектрометра с полупроводниковым детектором

Для упрощения рассуждений будем считать, что рассматриваемый в этой части детектор имеет нулевую (меньше 0,2 мкм) толщину мертвого слоя, а измеряемый сигнал обусловлен флуоресцентным сигналом образца, зарегистрированным в пике полного поглощения детектора; фон вблизи линии будем считать обусловленным процессами, приводящими к регистрации фотонов вблизи аналитической линии, такими, как рассеяние образцом первичного излучения рентгеновской трубки и его регистрации в пике полного поглощения, рассеяние образцом излучения с высокой энергией и регистрацией этих фотонов в «горбе потерь» и т.п.

Также для упрощения анализа будем рассматривать спектры чистых элементов. Расчеты, касающиеся малых содержаний элементов в некоторой матрице, принципиально не изменяют картину фона, тогда как интенсивность линии падает. Также очевидно, что чем больше фон вблизи рассматриваемой линии, тем хуже чувствительность аппаратуры к содержанию элементов с близкими к этой линии энергиями.

3.8.1. Зависимость контрастности сигнала от напряжения на рентгеновской трубке.

На рис. 3.13. и табл. 3.2 приведены результаты расчетов сигнала и фона применительно к рентгенофлуоресцентным энергодисперсионным

спектрометрам с Si(Li) детектором, Rh рентгеновской трубкой и титановым образцом. На рис. 3.14 приведены аналогичные результаты при использовании Ge детектора.

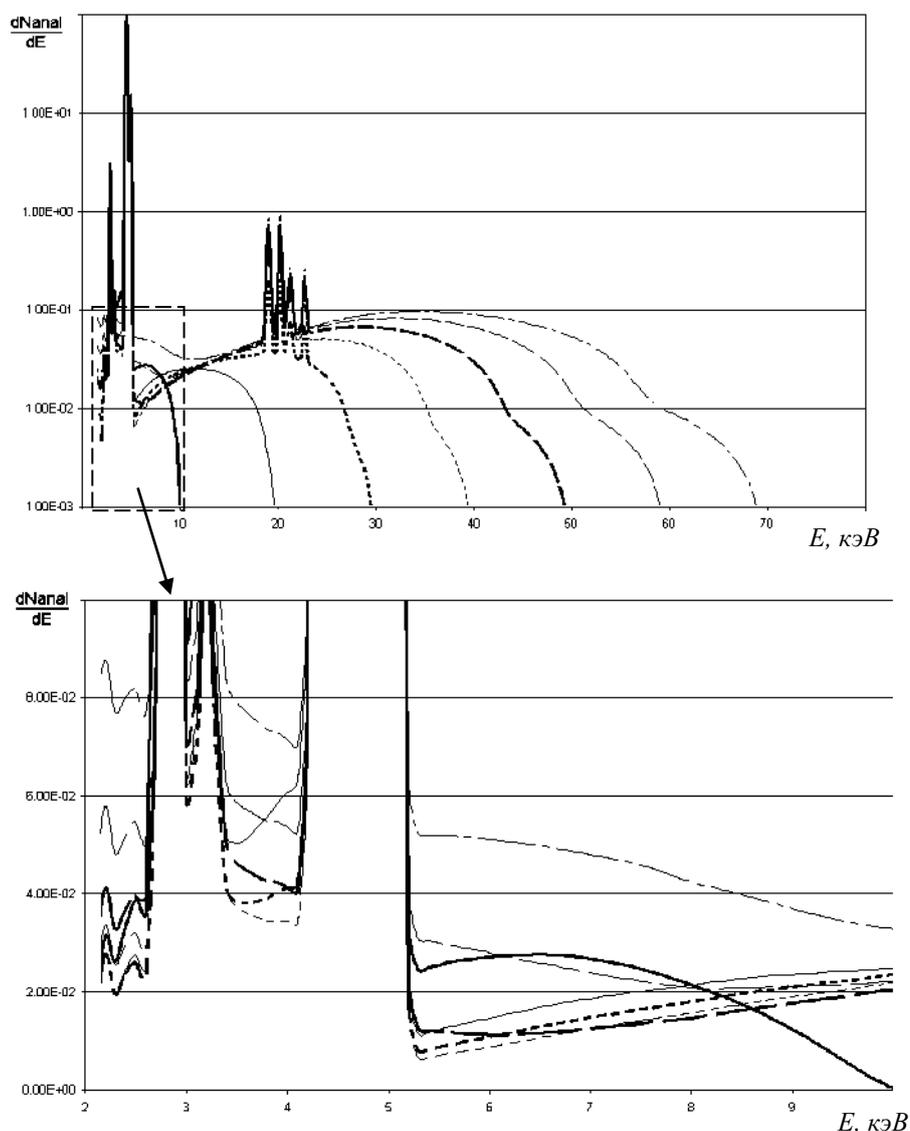


Рис. 3.13. Измеряемый сигнал и фон (расчет), нормированный на интенсивность анализируемой линии (Ti), рассчитанный для рентгеновских трубок с заземленным анодом. Напряжения на трубке – 10 кВ (толстая линия), 20 кВ (тонкая линия), 30 кВ (толстая точечная линия), 40 кВ (тонкая точечная линия), 50 кВ (толстая пунктирная линия), 60 кВ (тонкая пунктирная линия), 70 кВ (тонкая штрих-пунктирная линия). Толщина бериллиевого окна трубки – 100 мкм, анод трубки – Rh, толщина Si(Li) детектора 5 мм.

Таблица 3.2.

Отношение измеряемый сигнал(по K_{α} линии) /фон на линии Ti в зависимости от напряжения на рентгеновской трубке U . Условия совпадают с приведенными на рис. 3.10, 3.13, табл. 3.1. для Si детектора.

U, кВ	Отношение «измеряемый сигнал»/«измеряемый фон»	
	со стороны высоких энергий (5,5 кэВ)	со стороны низких энергий (4 кэВ)
10	4000	660
20	8000	1600
30	12000	2500
40	15000	2800
50	8000	2500
60	2800	1800
70	1800	1400

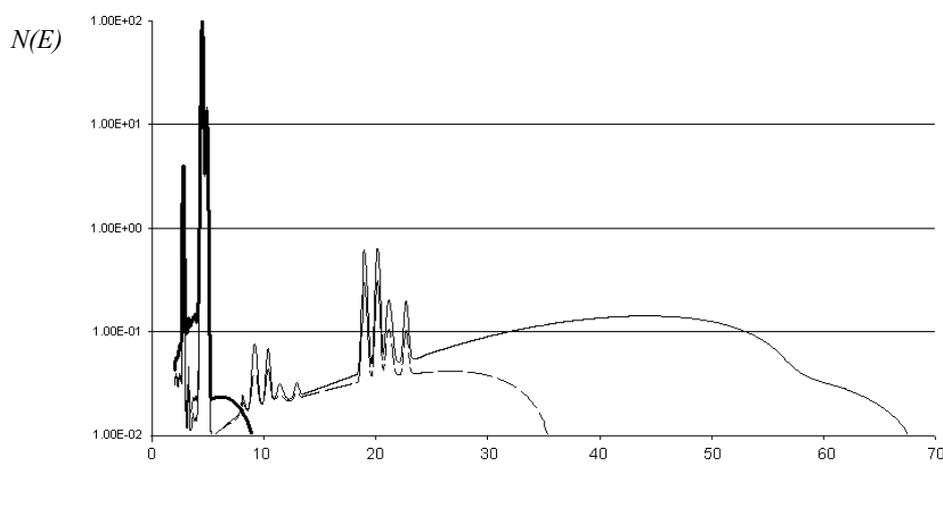


Рис. 3.14. Измеряемый сигнал и фон (расчет), нормированный на интенсивность анализируемой линии (Ti), рассчитанный для рентгеновских трубок. Напряжения на трубке – 10 кВ (толстая линия), 40 кВ (тонкая пунктирная линия), 70 кВ (тонкая линия). Толщина бериллиевого окна трубки – 100 мкм, анод трубки – Rh, толщина Ge детектора 5 мм.

Для расчета спектрального состава излучения рентгеновской трубки использована модель, предложенная в работе [34]. Все рассматриваемые далее в этом разделе спектры спектры нормированы на интенсивность флуоресцентной линии.

Следует отметить, что зависимость контрастности в этом случае отличается от поведения контрастности в случае «физического» сигнала и фона (см. рис. 3.9, табл. 3.1), поскольку детектор вносит свои искажения в наблюдаемый спектр.

Для Si(Li) детектора при напряжениях на рентгеновской трубке выше 40 кВ в районе линии титана начинает сказываться «горб потерь» функции отклика детектора (например, рисунки 2.11, 2.12), образующийся вследствие регистрации детектором достаточно жесткого первичного излучения, рассеянного образцом. Для иллюстрации этого эффекта на рисунках рассматривается не только область линии, в районе которой рассчитывается контрастность, но и область спектра с высокой энергией, регистрация фотонов из которой в «горбе потерь» приводит к увеличению фона в районе линий с малой энергией.

Значительное отличие фона слева и справа от линии, обусловленное K -скачком коэффициента поглощения, падает с ростом напряжения на рентгеновской трубке. Это объясняется падением вклада в фон когерентного и некогерентного рассеяния образцом тормозного излучения рентгеновской трубки и ростом вклада регистрации рассеянных образцом высокоэнергетических фотонов в «горбе потерь». Из результатов расчетов видно, что оптимальным с точки зрения контрастности сигнала на линии титана будет напряжение 30-40 кВ на рентгеновской трубке.

Следует также отметить значительное увеличение фона, похожего на линию сигнала, в районе энергий 2,5-3,5 кэВ, обусловленного регистрацией K линий титана (4,5 кэВ - K_a и 5 кэВ - K_b) в пике фотопотерь детектора.

Для Ge детектора вследствие меньшей вероятности регистрации в «горбе потерь» в рассматриваемом диапазоне энергий контрастность не имеет ярко выраженного экстремума (рисунок 3.14) и оптимальным напряжением на рентгеновской трубке будет напряжение, большее 30 кВ.

Также из рисунков 3.10 и 3.13 следует, что при использовании рентгеновских трубок в энергодисперсионных спектрометрах фон, обусловленный тормозным излучением электронов не является значимым.

3.8.2. Влияние толщины Si детектора на контрастность.

На рис. 3.15а) и таблице 3.3 представлен рассчитанный сигнал и фон при использовании радиоактивного источника ^{109}Cd и Si(Li) детекторов различной толщины для титанового образца. Из рисунка видно, что для приведенных условий в области линии Ti контрастность повышается в случае уменьшения толщины детектора. Это объясняется тем, что эффективность регистрации фотона, рассеянного образцом, с энергиями 50-90 кэВ в «горбе потерь» с уменьшением толщины детектора падает (см. рис. 2.13), тогда как вероятность регистрации в пике полного поглощения линии титана остается постоянной. Более детальное обсуждение зависимости параметров функции отклика детектора в зависимости от толщины детектора приведено в главе 2.

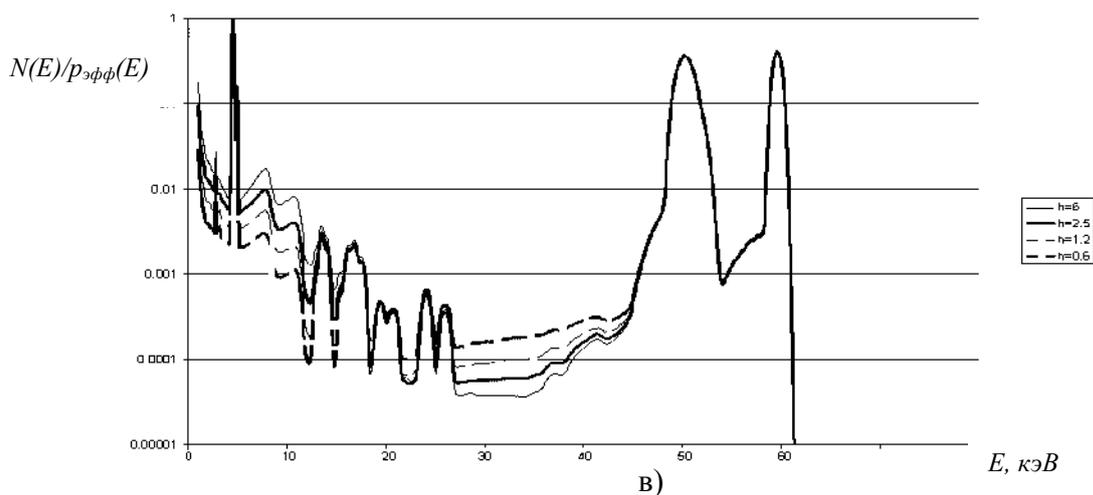
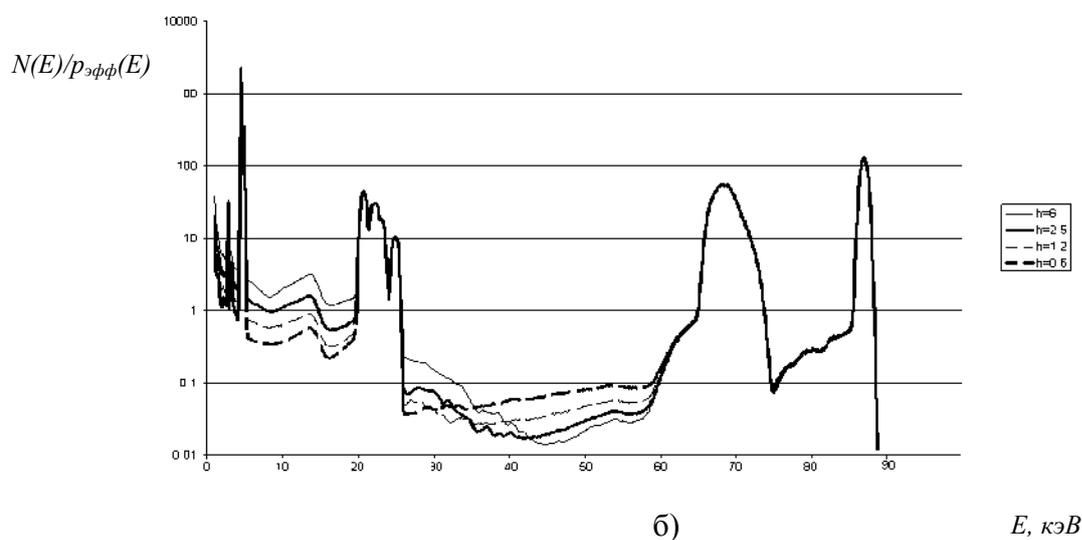
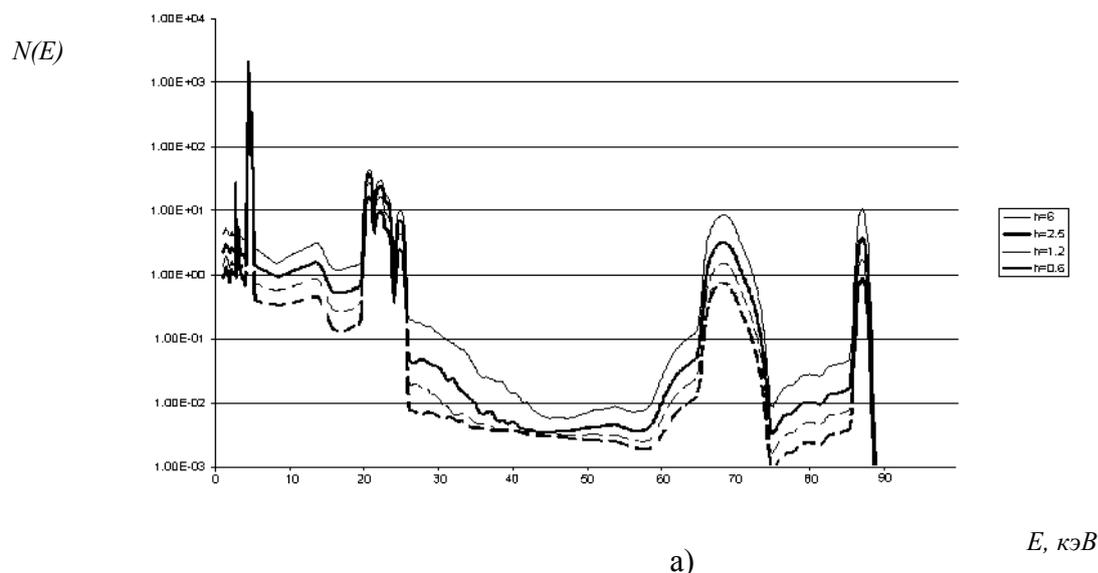


Рис. 3.15. Сигнал и фон при использовании Si(Li) детекторов различной толщины h . Образец Ti.

а) без коррекции на эффективность детектора, источник ^{109}Cd ; б) откорректированный на эффективность детектора, источник ^{109}Cd ; в) откорректированный на эффективность детектора, источник ^{241}Am .

Таблица 3.3.

Зависимость отношения сигнал/фон на линии Ti от толщины Si(Li) детектора h. Условия совпадают с приведенными на рис. 3.15 а).

Толщина детектора h, мм	Отношение сигнал/фон
6	620
2,5	1400
1,2	2700
0,6	5200

Однако масштаб рис. 3.15а непригоден для оценки контрастности в зоне падения эффективности детектора, поскольку в этой области одновременно с уменьшением фона будет уменьшаться интенсивность флуоресцентных линий, причем по разному для детекторов различной толщины. Поэтому на рис. 3.15б,в) приведен сигнал и фон при тех же условиях, откорректированный на эффективность детектора.

Из рис. 3.15 б следует, что если в районе 2-20 кэВ при уменьшении толщины детектора контрастность увеличивается (почти на порядок при уменьшении толщины детектора с 6 мм до 0.6 мм), то в районе 30-50 кэВ фон растет (соответственно контрастность при наличии линий в этом районе энергий падает). Это объясняется тем, что вероятность регистрации в «хвосте», обусловленном выходом электронов, практически не изменяется в зависимости от толщины детектора. Следует, однако, отметить, что в области 30-50 кэВ наши расчеты не слишком хорошо подтверждаются экспериментом. В областях, где фон остается неизменным, он обусловлен регистрацией рассеянных фотонов.

Подобное поведение сигнала и фона, когда рассеянное образцом излучение после регистрации в «горбе потерь» является причиной фона в области низких энергий, характерно при использовании в качестве источника излучения ^{241}Am для возбуждения флуоресценции Ti (рис.

4,в), а также для других матриц при использовании источников излучения ^{241}Am и ^{109}Cd .

В случае использования для возбуждения флуоресценции рентгеновских трубок фон в основном обусловлен рассеянным тормозным излучением рентгеновской трубки. Из расчетов следует, что при этом толщина детектора не будет влиять на контрастность сигнала, за исключением некоторого улучшения отношения сигнал/фон в области малых энергий при достаточно высоких напряжениях рентгеновской трубки (50-80 кВ). Однако, как уже было показано, оптимальное напряжение для возбуждения титанового образца будет лежать в области 30-40 кВ.

3.8.3. Выбор источника первичного излучения для обеспечения максимальной контрастности

Ограничимся расчетами для трех источников – ^{241}Am , ^{109}Cd и Rh трубка с напряжением 40 кВ – для образцов Cu и Ti и напряжением 70 кВ для Ba.

В случае Ti образца (рис. 3.16а), табл. 3.4, лучшие характеристики при возбуждении оказываются у родиевой рентгеновской трубки. Это связано с тем, что рассеянное тормозное излучение рентгеновской трубки, которое в основном обуславливает фон в этом случае, уже не так интенсивно, как, например, в области 8-20 кВ. Для источников ^{241}Am и ^{109}Cd основную интенсивность фона в этом случае определяют процессы регистрации детектором в «горбе потерь» высокоэнергетических первичных фотонов, рассеянных образцом.

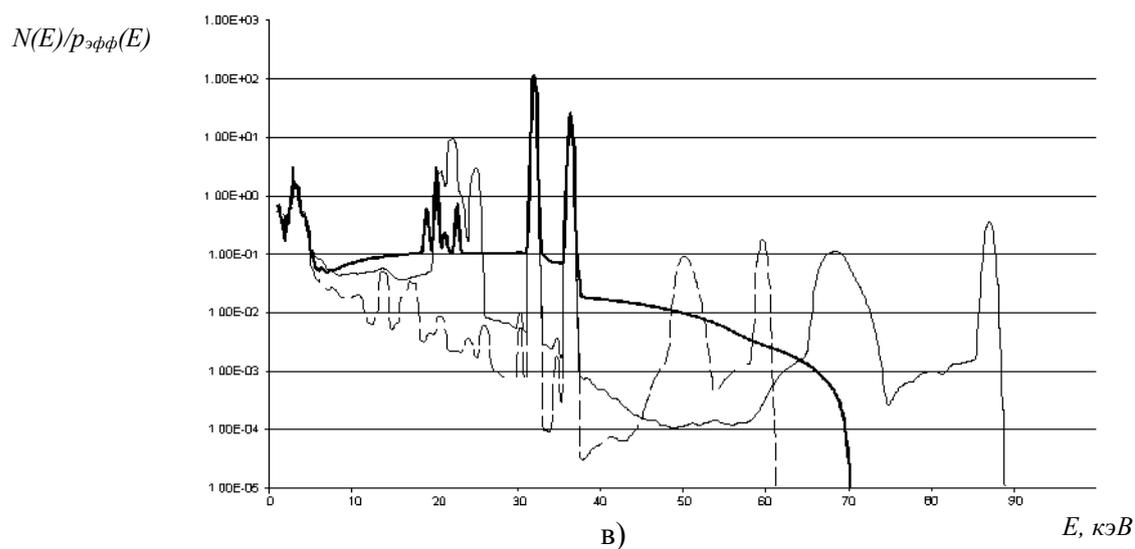
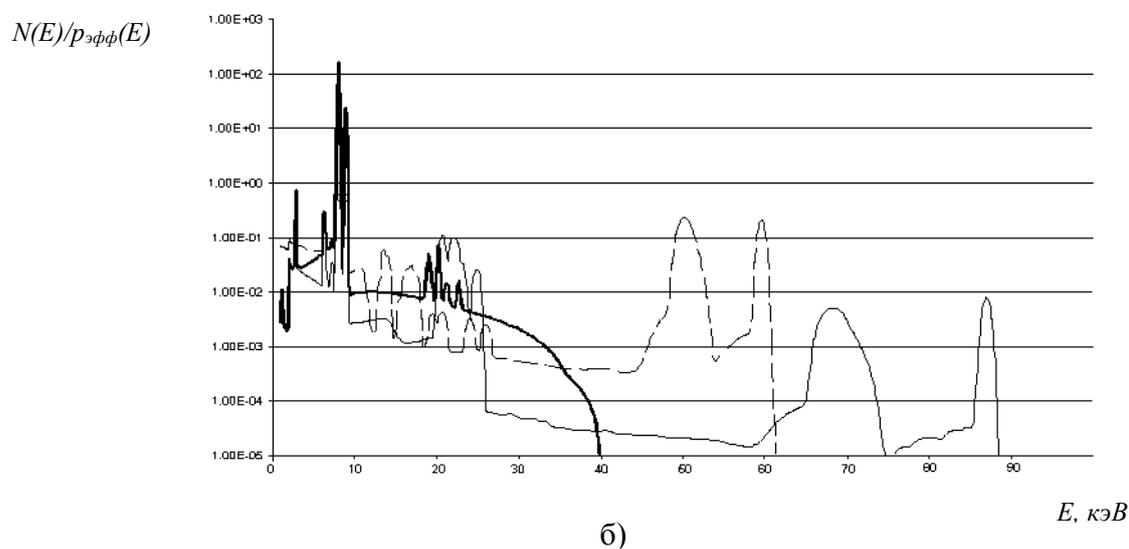
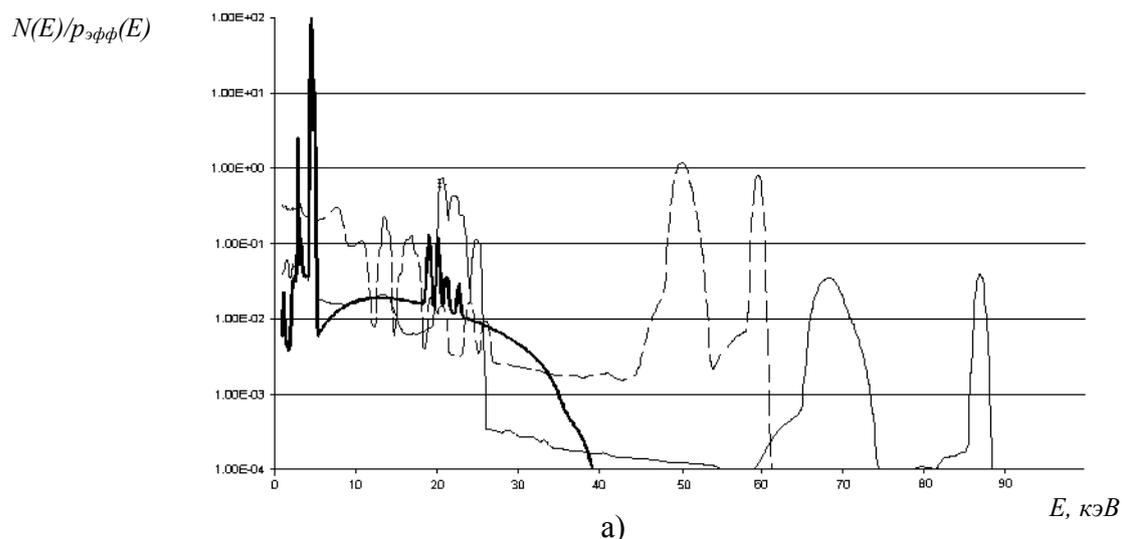


Рис. 3.16. Сигнал и фон откорректированного на эффективность детектора.

а) Образец – Ti. Детектор толщиной 0,6 мм. Источники – ^{241}Am (пунктир), ^{109}Cd – тонкая линия, Rh трубка 40 кВ – толстая линия. б) Образец – Cu. Детектор толщиной 0,6 мм. Источники – ^{241}Am (пунктир), ^{109}Cd – тонкая линия, Rh трубка 40 кВ – толстая линия. в). Образец Ba. Детектор толщиной 6 мм. Источники – ^{241}Am (пунктир), ^{109}Cd – тонкая линия, Rh трубка 70 кВ – толстая линия.

Таблица 3.4.

Отношение сигнал/фон для различных источников первичного излучения. Условия совпадают с условиями рис. 3.16.

Образец, линии		Толщина детектора, мм	Отношение сигнал/фон при источнике возбуждения			
			^{241}Am	^{109}Cd	Rh трубка 40 кВ	Rh трубка 70 кВ
Ti, K_{α}	Слева от K_{α}	0,6	550	3800	4000	-
	Справа от K_{β}		580	5600	15000	-
Cu, K_{α}	Слева от K_{α}	0,6	2700	12000	2100	-
	Справа от K_{β}		6200	32000	11000	-
Ba, K_{α}	Слева	6	110000	15000	-	1000
	Справа		1200000	20000	-	1100

Для медного образца (рис. 3.16,б) наилучшую контрастность обеспечивает источник ^{109}Cd . В случае использования рентгеновской трубки в районе линии меди основная часть фона связана с когерентным и комптоновским рассеянием первичного излучения рентгеновской трубки, которое становится значительным, а при применении источника ^{241}Am – с регистрацией комптоновски рассеянного образцом излучения высокой энергии (59,6 кэВ) в «горбе потерь».

Следует также отметить, что для расчетов в случае медного образца, приведенных в табл. 3 и на рис. 3.16,б) была взята толщина детектора 0,6 мм. Если детектор будет иметь толщину 6 мм, ситуация изменится. Фон для случая Rh рентгеновской трубки при напряжении 40 кэВ почти не изменится, поскольку практически весь обусловлен регистрацией

рассеянного образцом первичного излучения рентгеновской трубки. При использовании источников ^{241}Am и ^{109}Cd фон в районе линии меди увеличится почти на порядок (см. рис. 3), из-за усиления роли «горба потерь». В этом случае наилучшую контрастность будет обеспечивать рентгеновская трубка с напряжением 40 кэВ.

Для Ва (рис. 3.16,в) наилучшую контрастность будет обеспечивать источник ^{241}Am . В области линии бария рассеянное излучение тормозной компоненты рентгеновской трубки является основной причиной фона при ее использовании, а линия источника ^{109}Cd с энергией 88 кэВ хуже возбуждает линию бария, чем линия источника ^{241}Am с энергией 59,6 кэВ.

3.8.4. Оценка контрастности при изменении материала детектора.

На рис. 3.17 представлены результаты расчетов при использовании источника ^{109}Cd для Ti, Cu, Ba образцов и Si и Ge детекторов толщиной 5 мм и 0,5 мм, откорректированные на эффективность детектора. На рис. 3.18 и 3.19 такие же расчеты представлены для случая использования источника излучения ^{241}Am и Rh рентгеновской трубки соответственно.

Из рисунков 3.17 и 3.18 видно, что при использовании для возбуждения флуоресценции радиоактивных источников ^{109}Cd и ^{241}Am отношение сигнал/фон вблизи флуоресцентных линий существенно зависит от материала и толщины детектора. Рассеянное образцом первичное излучения линии такого источника с высокой энергией (диапазон 60-88 кэВ для источника ^{109}Cd и 40-60 кэВ для источника ^{241}Am) при регистрации в горбе потерь, обусловленном комптоновским рассеянием в детекторе (области до 15 кэВ при использовании источника ^{109}Cd и до 10 кэВ при использовании источника ^{241}Am) существенно увеличивает фон в указанной области энергий горба потерь.

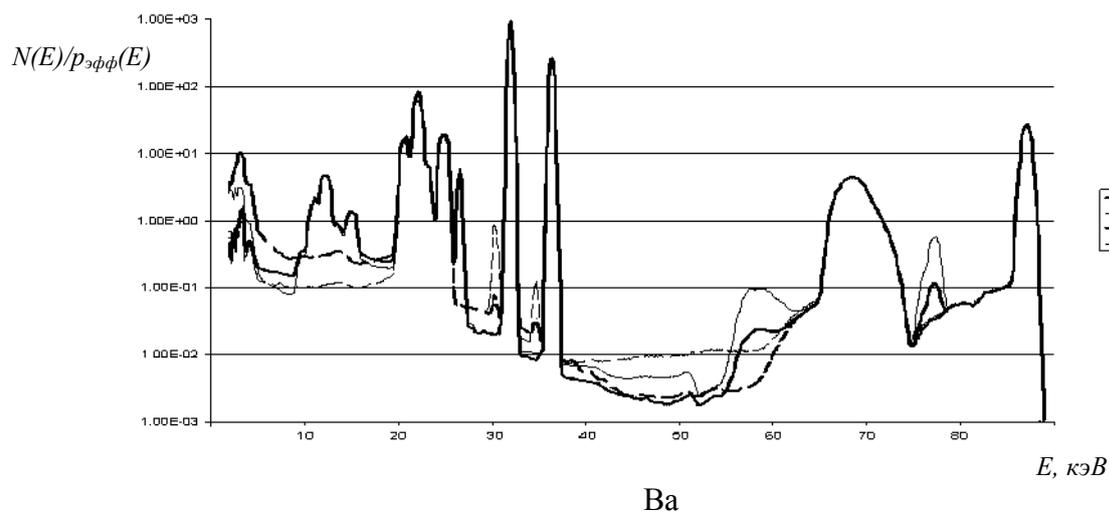
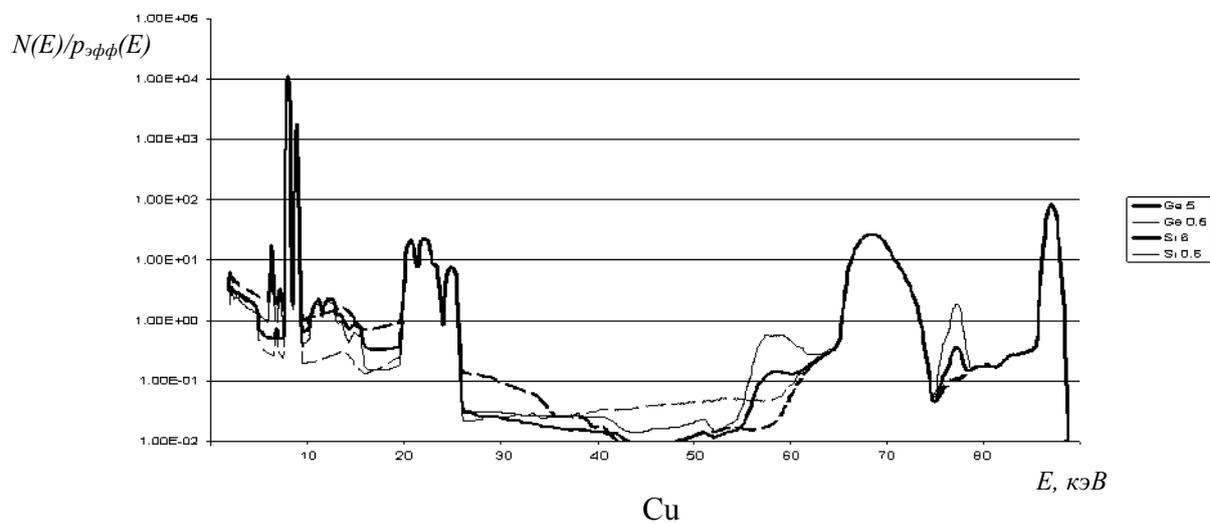
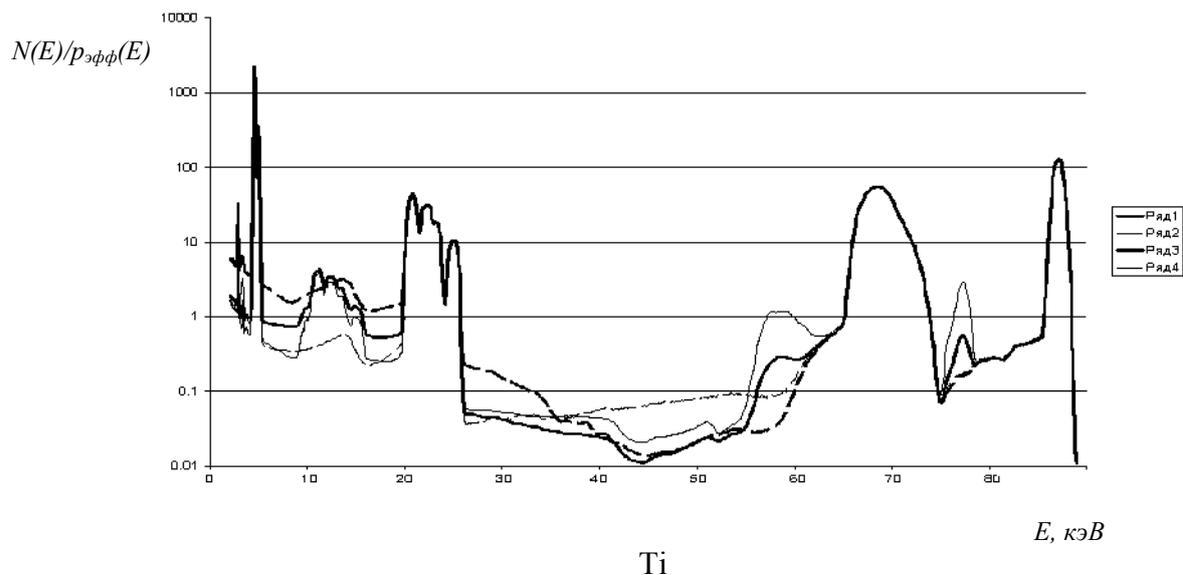


Рис. 3.17. Расчетный сигнал и фон при использовании источника ^{109}Cd для Ti, Cu, Ba образцов. Детекторы: Ge толщиной 5 мм (толстая непрерывная линия), 0,5 мм (тонкая непрерывная линия), Si(Li) толщиной 6 мм (толстая пунктирная линия), 0,6 мм (тонкая пунктирная линия).

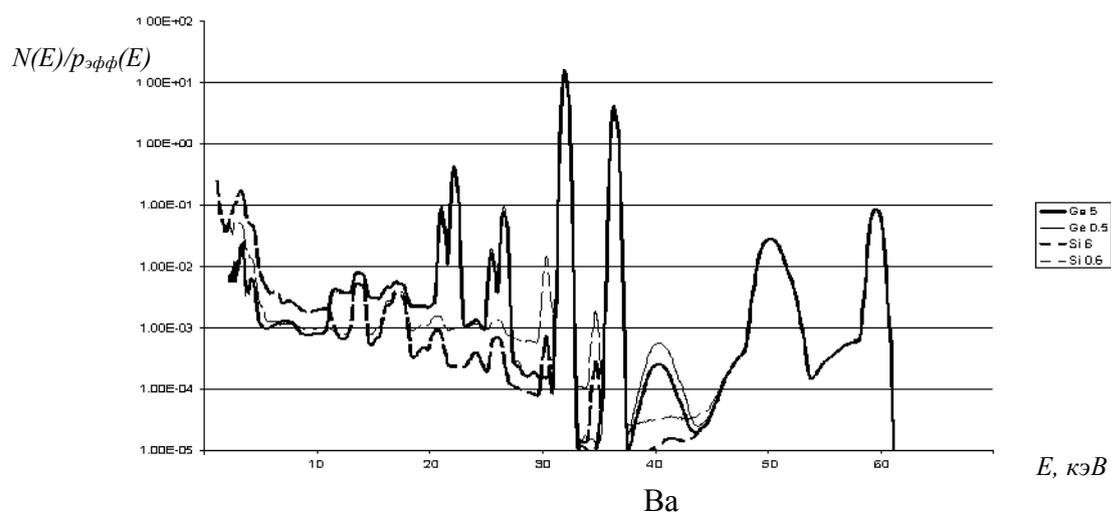
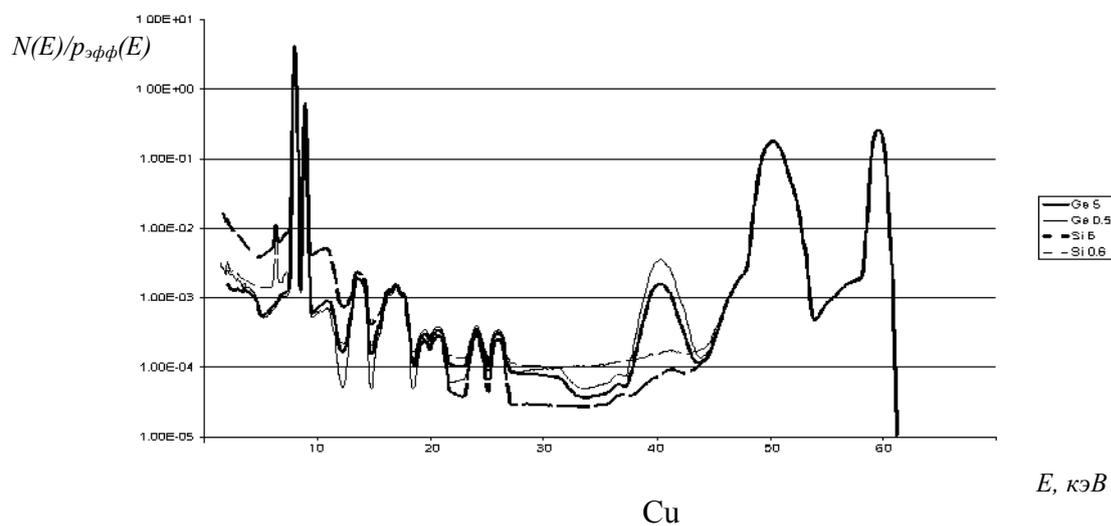
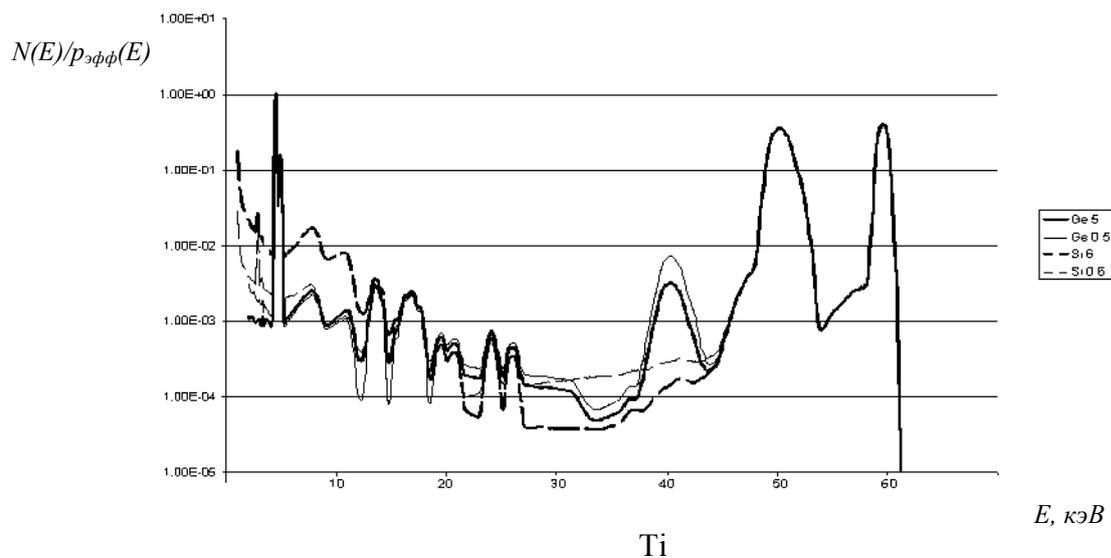


Рис. 3.18. Расчетный сигнал и фон при использовании источника ^{241}Am для Ti, Cu, Ba образцов. Детекторы: Ge толщиной 5 мм (толстая непрерывная линия), 0,5 мм (тонкая непрерывная линия), Si(Li) толщиной 6 мм (толстая пунктирная линия), 0,6 мм (тонкая пунктирная линия).

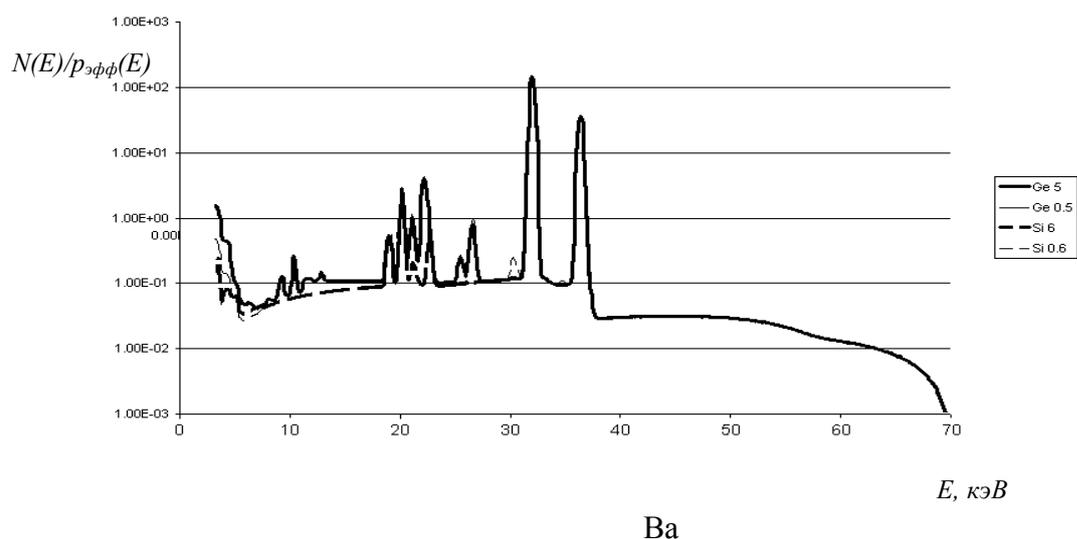
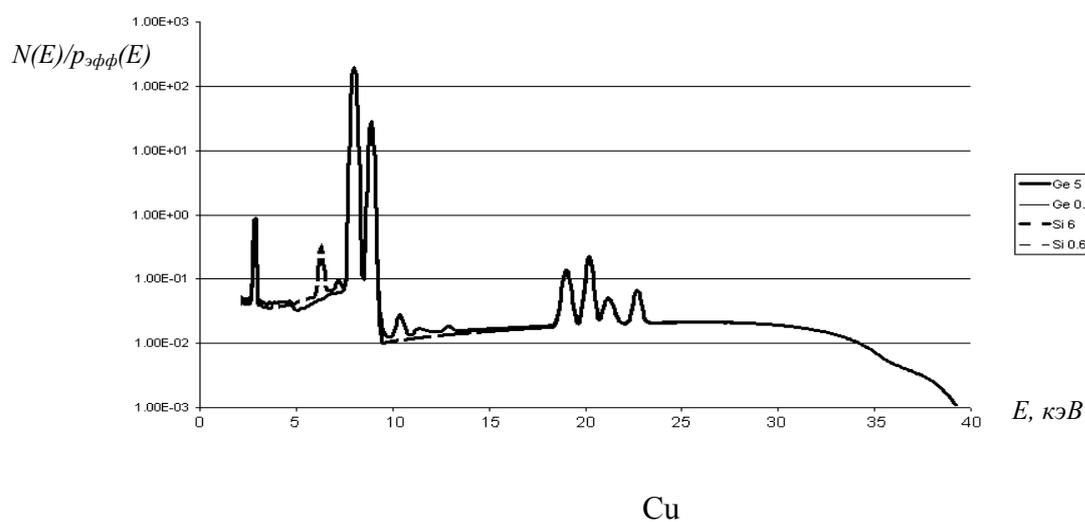
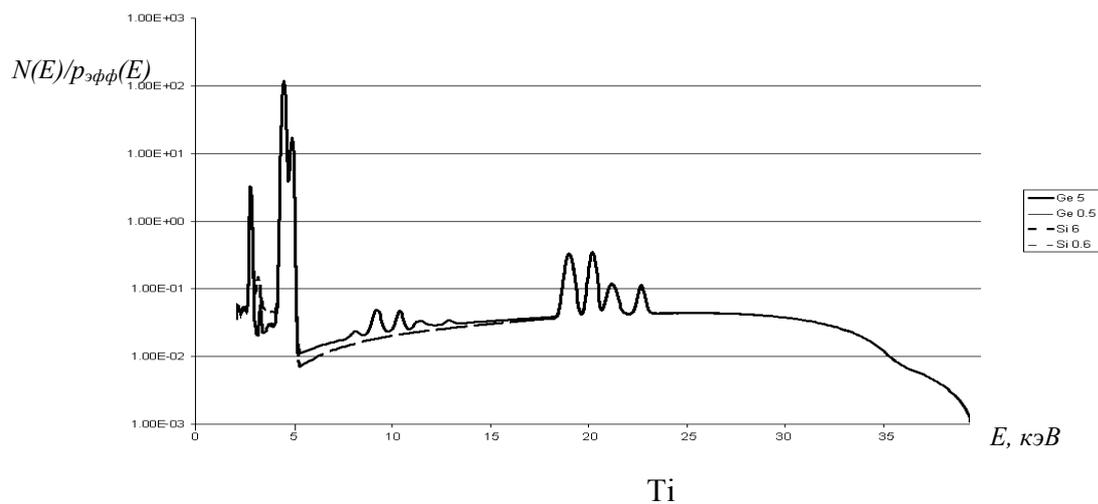


Рис. 3.19. Расчетный сигнал и фон при использовании Rh рентгеновской трубки для Ti, Cu, Ba образцов. Напряжение на трубке: 40 кВ для Ti и Cu, 70 кВ для Ba. Детекторы: Ge толщиной 5 мм (толстая непрерывная линия), 0,5 мм (тонкая непрерывная линия), Si(Li) толщиной 6 мм (толстая пунктирная линия), 0,6 мм (тонкая пунктирная линия). (Результаты слились, поскольку практически не зависят от толщины детектора)

При этом следует отметить, что регистрация в горбе потерь существенно зависит от материала и толщины детектора, что обуславливает лучшие характеристики в указанной области для тонкого кремниевого и германиевых детекторов. Однако, для германиевого детектора дополнительной проблемой является высокая вероятность регистрации в пике фотопотерь, что является причиной увеличения фона в областях 9-15 кэВ и 55-65 кэВ при использовании источника ^{109}Cd и 38-45 кэВ при использовании источника ^{241}Am . Также для случая Ge детектора следует отметить, что любая регистрируемая линия с энергией, большей энергии К края поглощения германия вызывает повышение фона в области соответствующих пиков фотопотерь.

Для случая возбуждения флуоресценции излучением рентгеновских трубок (рис. 3.19) характерно гораздо более слабое изменение контрастности по сравнению со случаем использования источников ^{109}Cd и ^{241}Am . Однако гораздо более выраженные пики фотопотерь для Ge детектора также будут значительно увеличивать фон в случае регистрации сильных спектральных линий, как флуоресцентных образца, так и рассеянных характеристических рентгеновской трубки.

Следует отметить, что данная теория определяет лишь предельные характеристики энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных спектрометров, связанные с радиационным переносом энергии в образце и детекторе и электронным переносом энергии в детекторе – то есть для высококачественных детекторов с толщиной мертвого слоя порядка 0,1-0,2 мкм. В реальности наблюдаемая картина усложняется и может изменяться из-за неучтенных факторов, касающихся конструкции детектора и электроники регистрирующей системы.

3.9. Выводы:

- предложена геометрическая модель, позволяющая описывать взаимодействия в образце с учетом большого диапазона углов рассеяния в современных установках энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа; с учетом введенного геометрического фактора скорректированы выражения для описания флуоресценции, когерентного и комптоновского рассеяния, а также тормозного излучения электронов, возникающих в образце.

- рассчитан геометрический фактор установки, использованной при проведении экспериментов; рассчитан спектр излучения, возникающего в моноэлементном образце при воздействии монохроматического излучения;

- результаты расчетов измеряемого спектра при использовании источников рентгеновского излучения ^{109}Cd и ^{241}Am сопоставлены с экспериментальными данными; получено удовлетворительное согласие;

- более 90% фона в области энергий 1 – 12 кэВ при использовании Si(Li) детектора и радиоактивного источника ^{241}Am обусловлено рассеянием первичного излучения в образце и последующим его комптоновским рассеянием в детекторе с образованием «горба потерь»; этот процесс также является определяющим (порядка 90 % фона) в области 1-20 кэВ при использовании источника ^{109}Cd , имеющего линию с энергией 88 кэВ; процесс образования дополнительного «хвоста» горба потерь вследствие многократного комптоновского рассеяния в детекторе является значимым с точки зрения образования фона при использовании источников ^{241}Am (в области энергий 12-20 кэВ) и ^{109}Cd (в области энергий 20-35 кэВ);

- показана возможность оптимизации условий возбуждения в энергодисперсионной аппаратуре с целью повышения контрастности сигнала; приведен пример расчета измеряемого фона при использовании

полихроматического источника излучения и Si(Li) детектора; на примере Ti образца показано, что в случае энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа элементов ($18 < Z < 25$), оптимальные условия возбуждения будут существовать в области напряжений на рентгеновской трубке порядка 30-40 кВ.

ГЛАВА 4

Математическая модель двухслойных комбинированных детекторов и спектрометров на их основе

4.1. Исследование параметров двухслойных детекторов.

Как уже было рассмотрено ранее, существенным недостатком Ge детектора в рентгеновской области спектра является высокая вероятность регистрации фотона в пиках K фотопотерь в областях энергий выше K края поглощения вследствие большого выхода флуоресценции Ge. Этот процесс приводит к увеличению фона в областях, отличающихся от энергии регистрируемых интенсивных линий на энергию Ka и K β флуоресцентных фотонов Ge.

Недостатком AsGa и CdTe детекторов по сравнению с Ge является удвоенное количество пиков потерь, соответствующих как флуоресцентному излучению As, Ga или Cd и Te соответственно, что в ряде случаев затрудняет расшифровку спектров. Возможно, это является одной из причин редкого использования подобных детекторов для детектирования рентгеновского излучения.

Для подавления «горба потерь» (например, [401, 402]) в гамма области излучения применялись схемы, в которых использовались сегментированные либо двухслойные Ge детекторы и электронные схемы, работающие либо в режиме с режекцией одновременно пришедших импульсов, либо в режиме суммирования амплитуд одновременно пришедших импульсов.

В предлагаемом нами детекторе для регистрации излучения использованы Si и Ge детекторы рентгеновского излучения (комбинированный Si-Ge детектор, рис. 4.1), расположенные

непосредственно друг за другом, либо Si и AsGa детекторы (комбинированный Si-AsGa детектор), расположенные аналогично, а также электронная схема, аналогичная по свойствам использованным в работах [401, 402]. Ближним к источнику ионизирующего излучения является тонкий (порядка 0,5 мм) Si детектор, который выполняет роль основного детектора падающего излучения при энергиях излучения до 10 кэВ, и роль детектора фотонов К фотопотерь Ge (либо AsGa) детектора при более высоких энергиях.

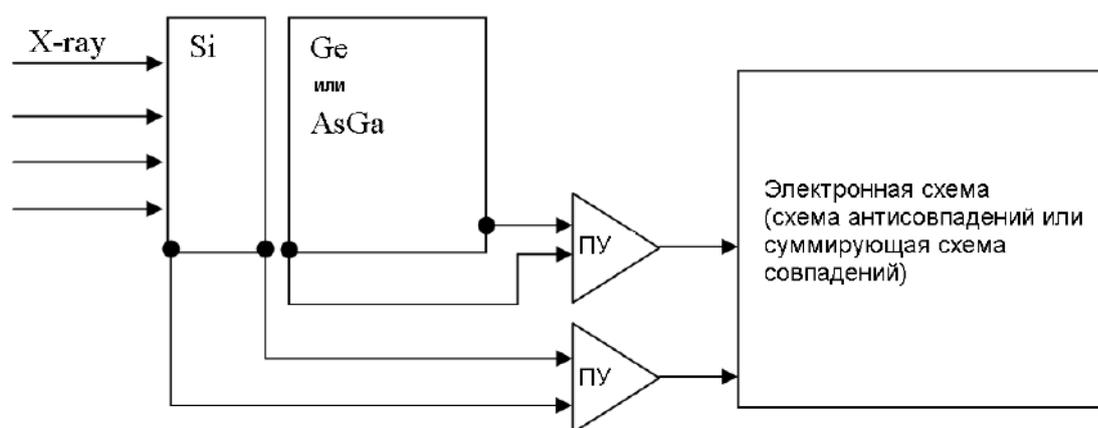


Рис. 4.1. Схема двухслойного рентгеновского комбинированного детектора.

На рис. 4.2а показана структура функции отклика Si детектора

Структура функции отклика Ge детектора (рис 4.2б) несколько отличается от функции отклика Si детектора. Основные отличия описаны в главе 2 данной работы. В рамках настоящего рассмотрения будет важно то, что в области энергий фотонов выше К края поглощения Ge очень большая вероятность выхода флуоресцентного фотона Ge, что обуславливает очень большую вероятность регистрации фотона в пике К фотопотерь, а также то, что вероятность регистрации в «горбе потерь» существенно меньше таковой для Si детектора.

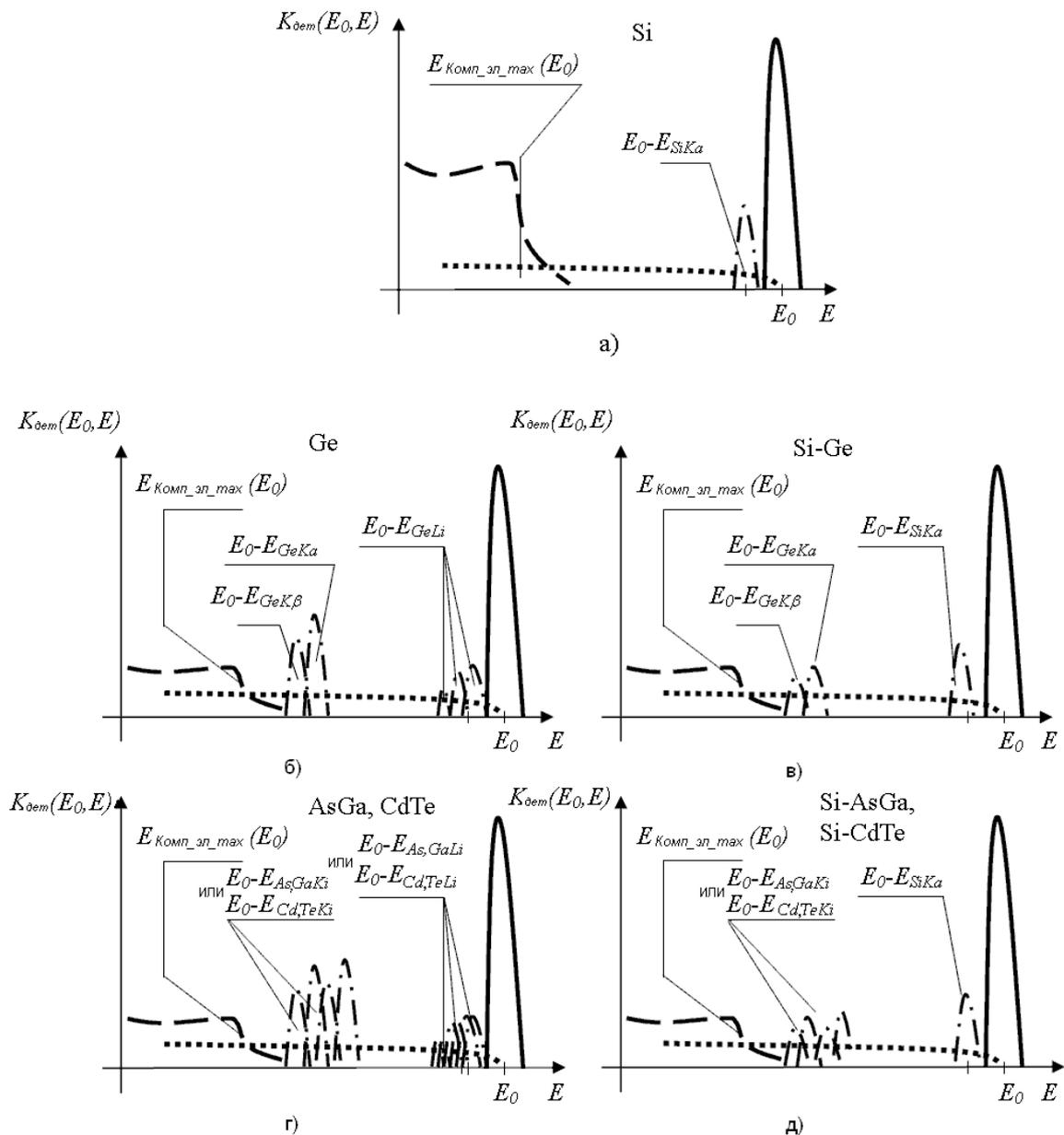


Рис. 4.2. Структура функции отклика детектора.

Пик полного поглощения (непрерывная линия), К-фотопотеря для Si и К- и L-фотопотеря для Ge и AsGa детекторов (штрих-пунктирная линия), Горб потерь (пунктирная линия), электронный хвост потерь (точечная линия).

а) Si детектор, б) Ge детектор, в) комбинированный Si-Ge детектор, г) AsGa детектор или CdTe детектор, д) комбинированный Si-AsGa детектор или Si-CdTe детектор.

Структура функции отклика AsGa детектора (рис 4.2 г) отличается от структуры функции отклика Ge детектора в основном удвоенным количеством пиков фотопотерь, соответствующих как As, так и Ga. Также, подобно Ge детектору, для AsGa детектора вероятность регистрации в «горбе потерь» существенно меньше, чем для Si детектора.

Структура функции отклика рассматриваемых комбинированных детекторов приведена на рис. 4.2 в для Si-Ge детектора и рис 4.2 д для Si-AsGa либо Si-CdTe детектора. Отличием является наличие пиков К фотопотерь, как Si, так и Ge или As и Ga (вероятностями регистрации в L пике фотопотерь для комбинированных детекторов пренебрежем). При этом интенсивность пиков фотопотерь в комбинированном детекторе существенно ниже, чем для однослойных Ge или AsGa детекторов. Это связано с тем, что флуоресцентные фотоны Ge (As и Ga, либо Cd и Te), выход которых через входную плоскость детектора сопровождается появлением пика фотопотерь, эффективно поглощается чувствительным слоем Si детектора.

Результаты расчета вероятностей регистрации фотона в разных частях функции отклика детектора показаны на рис. 4.3 а,б) для Si детектора с толщинами 6 и 0.6 мм соответственно. На рис. 4.3 в и 4.3 г приведены те же вероятности для Ge детектора и для рассматриваемого комбинированного Si-Ge детектора соответственно.

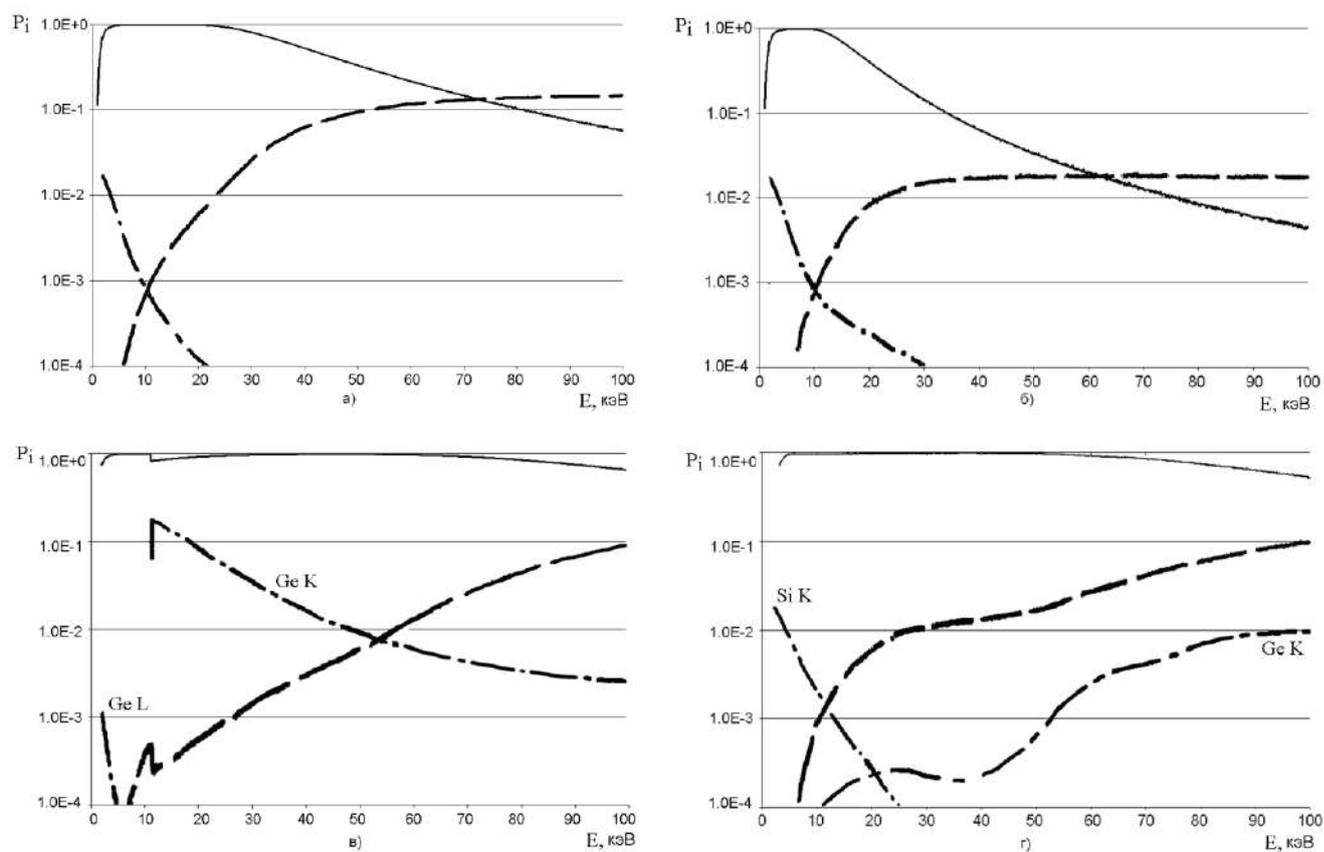


Рис. 4.3. Зависимости вероятностей регистрации фотона в различных частях функции отклика детектора от энергии фотона.

Эффективность детектора $p_{эфф}$ – вероятность регистрации фотона в пике полного поглощения (непрерывная линия), вероятность регистрации в пике фотопотерь $p_{ф}$ (штрих-пунктирная линия), вероятность регистрации в «горбе потерь» $p_{комп}$ (пунктирная линия).

- а) Si детектор толщиной 6 мм.
- б) Si детектор толщиной 0.6 мм.
- в) Ge детектор толщиной 5 мм.
- г) комбинированный Si-Ge детектор с Si детектором толщиной 0.5 мм и Ge детектором толщиной 5 мм.

Как было показано в главе 2, изменение толщины однослойного детектора влияет в основном на вероятности регистрации в пике полного поглощения $p_{\text{эфф}}$ и в «горбе потерь» $p_{\text{комп}}$. Расчетные вероятности регистрации в «хвосте потерь», обусловленном выходом электронов высоких энергий и пике фотопотерь практически не зависят от толщины. Это связано с тем, что потери вследствие выхода флуоресцентного фотона или электрона высокой энергии происходят в основном через входную поверхность детектора. Для Si детектора вероятность $p_{\text{эфф}}$ регистрации фотона в пике полного поглощения и вероятность $p_{\text{комп}}$ регистрации в «горбе потерь» становятся примерно равными при энергии фотонов примерно 60–70 кэВ. Это результат примерного равенства сечений фотопоглощения и комптоновского рассеяния в этой области энергий. Уменьшение толщины Si детектора приводит к уменьшению вероятности регистрации как в пике полного поглощения, так и «горбе потерь» в этом диапазоне энергий (см. рис. 4.3 а,б, которые даны для удобства сравнения).

В рассматриваемых комбинированных Si-Ge и Si-AsGa, Si-CdTe детекторах регистрация фотона низкой энергии (до 8-20 кэВ в зависимости от толщины используемого Si детектора) осуществляется Si детектором, имеющим низкую вероятность регистрации фотона в пике фотопотерь. При большей энергии фотона (диапазон энергий 8-40 кэВ) регистрация фотона происходит как в Si, так и в Ge, AsGa или CdTe детекторе. При этом существует практически 100% вероятность того, что флуоресцентный фотон Ge (или AsGa или CdTe) детектора, выходящий через входную плоскость детектора (случай, когда для одиночного детектора второго слоя фотон будет зарегистрирован в пике фотопотерь), будет зарегистрирован Si детектором. Эти два события (регистрация Ge детектором фотона в пике фотопотерь и регистрация флуоресцентного фотона Ge кремниевым детектором) будут

зарегистрированы как практически одновременные события, что предполагает два варианта работы электронной схемы, аналогичной приведенным в работах [401, 402]:

- с суммированием амплитуд импульсов, что должно позволить получить полную энергию попавшего в комбинированный полупроводниковый детектор фотона;

- с запрещением работы схемы регистрации (схема антисовпадений).

Для комбинированного полупроводникового детектора рентгеновского излучения видны следующие преимущества по сравнению с однослойным (см. рис 4.3 в,г для Ge и Si-Ge детектора и рис. 4.4а,б для AsGa и Si-AsGa детектора, рис. 4.5 для CdTe и Si-CdTe детекторов):

- вероятность регистрации в пике полного поглощения при высоких энергиях излучения, близкая к таковой для Ge, AsGa, CdTe детекторов;

- отсутствие провала эффективности при переходе через К край поглощения Ge (или As и Ga или Cd и Te), поскольку, во первых, провал эффективности обусловлен регистрацией фотона детектором в пике К фотопотерь, во вторых – регистрация большей части излучения для данной области излучения происходит в Si детекторе;

- меньшая интенсивность регистрации в «горбе потерь», чем для толстого Si детектора. Это объясняется тем, что при высоких энергиях излучения регистрация фотонов происходит в основном в Ge или AsGa или CdTe детекторе;

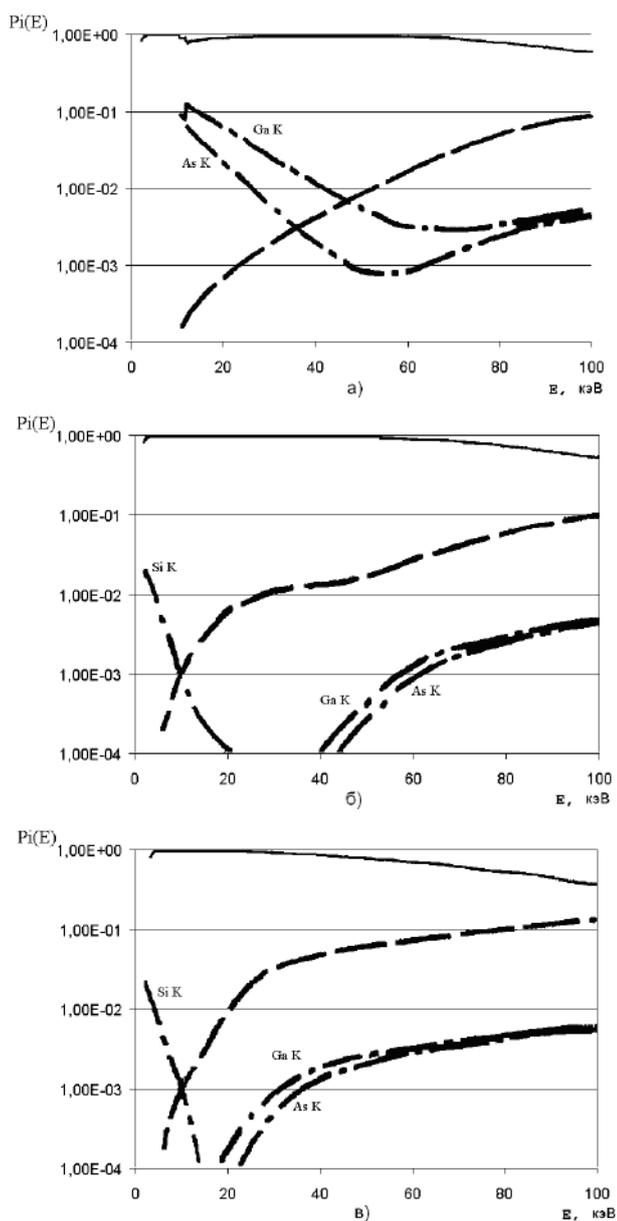


Рис. 4.4. Зависимости вероятностей регистрации фотона в различных частях функции отклика детектора от энергии фотона.

Эффективность детектора $p_{эфф}$ – вероятность регистрации фотона в пике полного поглощения (непрерывная линия), вероятность регистрации в пике фотопотерь $p_{ф}$ (штрих-пунктирная линия), вероятность регистрации в «горбе потерь» $p_{комп}$ (пунктирная линия).

а) AsGa детектор толщиной 6 мм.

б) комбинированный Si-AsGa детектор с толщиной AsGa детектора 5 мм и Si детектором толщиной 0.6 мм.

в) комбинированный Si-AsGa детектор с толщиной AsGa детектора 5 мм и Si детектором толщиной 2 мм.

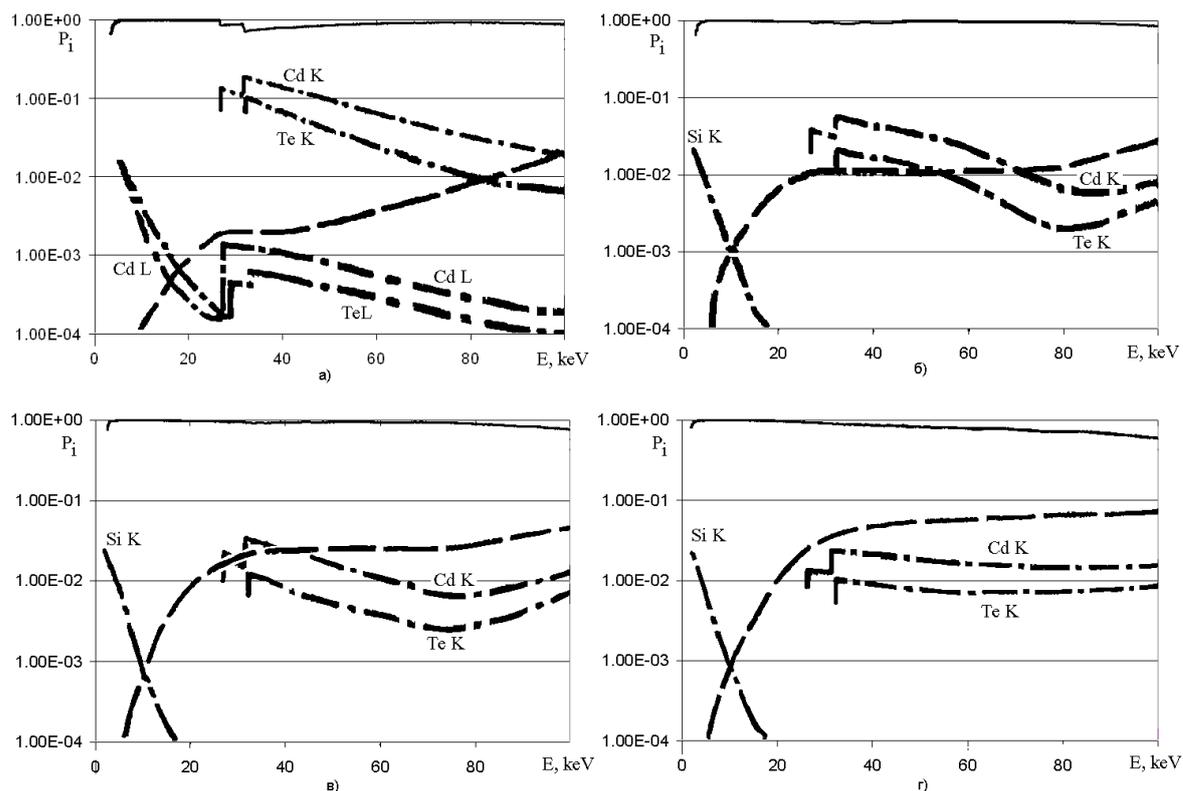


Рисунок 4.5. Зависимости вероятностей регистрации фотона в различных частях функции отклика детектора от энергии фотона для CdTe и Si-CdTe детекторов.

Эффективность детектора $p_{эфф}$ – вероятность регистрации фотона в пике полного поглощения (непрерывная линия), вероятность регистрации в пике фотопотерь $p_{ф}$ (штрих-пунктирная линия), вероятность регистрации в «горбе потерь» $p_{комп}$ (пунктирная линия).

а) CdTe детектор толщиной 6 мм.

б) комбинированный Si-CdTe детектор с толщиной CdTe детектора 5 мм и Si детектором толщиной 0.5 мм.

в) комбинированный Si-CdTe детектор с толщиной CdTe детектора 5 мм и Si детектором толщиной 1 мм.

г) комбинированный Si-CdTe детектор с толщиной CdTe детектора 5 мм и Si детектором толщиной 2 мм.

- несмотря на то, что интенсивность пика фотопотерь Si в комбинированном детекторе не сильно отличается от таковой для Si детектора, она все равно ниже, чем интенсивность пика фотопотерь Ge для Ge детектора или пиков фотопотерь для детектора второго слоя вследствие меньшего выхода флуоресценции; интенсивность пиков K фотопотерь Ge или As и Ga для комбинированного детектора на несколько порядков ниже, чем для Ge или AsGa или CdTe однослойного детектора;

- для комбинированного детектора при энергиях излучения, больших 40 кэВ, большая часть рентгеновских фотонов будет регистрироваться в Ge или AsGa или CdTe детекторе, что обуславливает высокую вероятность регистрации в пике полного поглощения, характерную для Ge и AsGa детекторов в этой области.

Оценка толщины Si детектора, устанавливаемого перед Ge или AsGa, или CdTe детектором, может быть выполнена следующим образом (рис. 4.4, 4.5):

- во первых, эффективность Si детектора на линиях флуоресценции Ge, As или Ga должна быть близка к единице, что обуславливает толщину Si детектора не менее 0,2 мм для Si-Ge и AsGa и не менее 0,5 мм для Si-CdTe детектора;

- во вторых, должен быть обеспечен спад эффективности Si детектора в области энергий более 20 кэВ, в которой становится значимой регистрация излучения в «горбе потерь» вследствие комптоновского рассеяния. Это требование обуславливает максимальную толщину Si детектора 1 мм. При большей толщине Si детектора (рис. 4.4в, 4.5г) начинает расти вероятность регистрации в «горбе потерь».

4.2. Оценка свойств энергодисперсионного спектрометра с двухслойным детектором.

Цель данной части работы – оценка уровня фона для некоторых случаев применения комбинированного Si-Ge детектора в рентгенофлуоресцентном энергодисперсионном спектрометре.

Как было показано в главе 3, в случае использования рентгеновских трубок (с напряжением до 50 кВ) для возбуждения флуоресценции, сигнал и фон слабо зависят от детектора, поскольку фон в основном обусловлен регистрацией рассеянного излучения. Подобный случай показан на рис. 4.6 для Si, Ge и Si-Ge детекторов с толщиной мертвого слоя порядка 0,1 мкм, Rh рентгеновской трубки с напряжением 40 кВ и медного образца. Для этого случая уровень фона при использовании Si-Ge детектора практически не отличается от уровня фона для Si детектора.

На рисунке 4.7 показан расчетный сигнал и фон для случая облучения медного образца излучением источника ^{109}Cd и регистрации излучения с помощью однослойных Si, Ge и комбинированного Si-Ge детектора. Из рисунка видно, что при использовании Si детектора фон в области 2-20 кэВ будет повышен вследствие регистрации высокоэнергетического излучения (линия 88 кэВ источника ^{109}Cd), рассеянной когерентно и некогерентно образцом и зарегистрированной впоследствии детектором в «горбе потерь». В случае использования Ge детектора значительная часть фона в области энергий 10-15 кэВ обусловлена регистрацией в пиках фотопотерь когерентно и некогерентно рассеянного образцом излучения (линии 22,1 кэВ и 24,8 кэВ источника ^{109}Cd). Рассматриваемый комбинированный Si-Ge детектор в этих условиях имеет наименьший уровень фона вследствие более низкой вероятности регистрации в «горбе потерь» по сравнению с Ge детектором и пиках фотопотерь по сравнению с Si детектором.

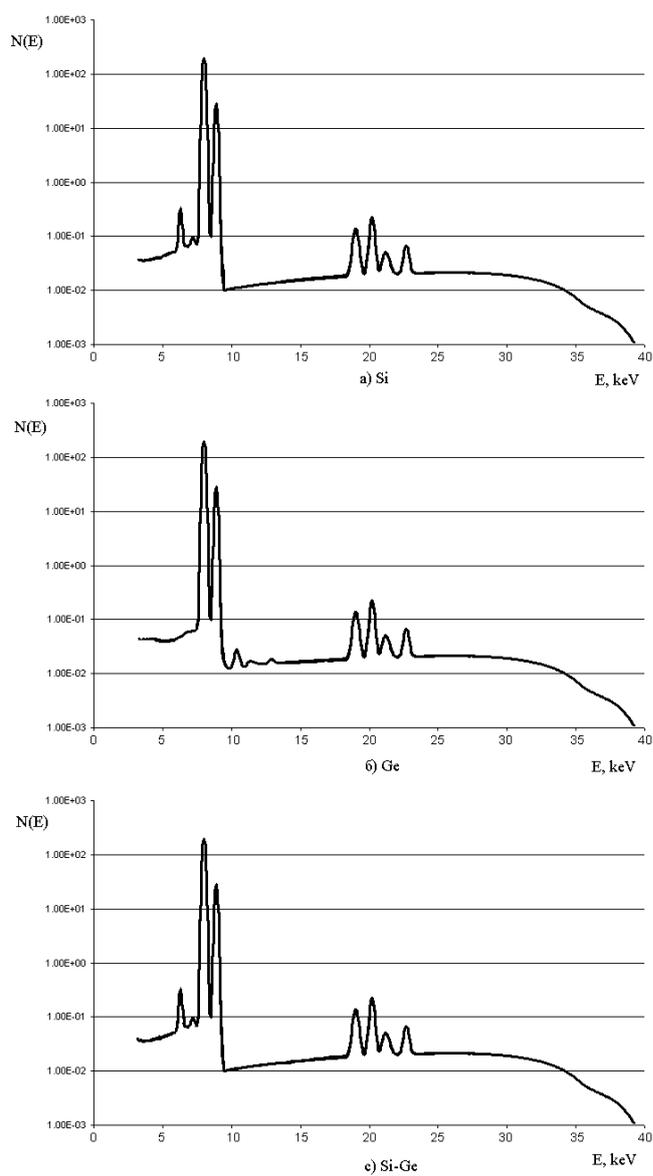


Рисунок 4.6. Расчетный уровень сигнала и фона при использовании рентгеновской трубки для возбуждения флуоресценции. Rh рентгеновская трубка с напряжением 40 кВ, Si образец.

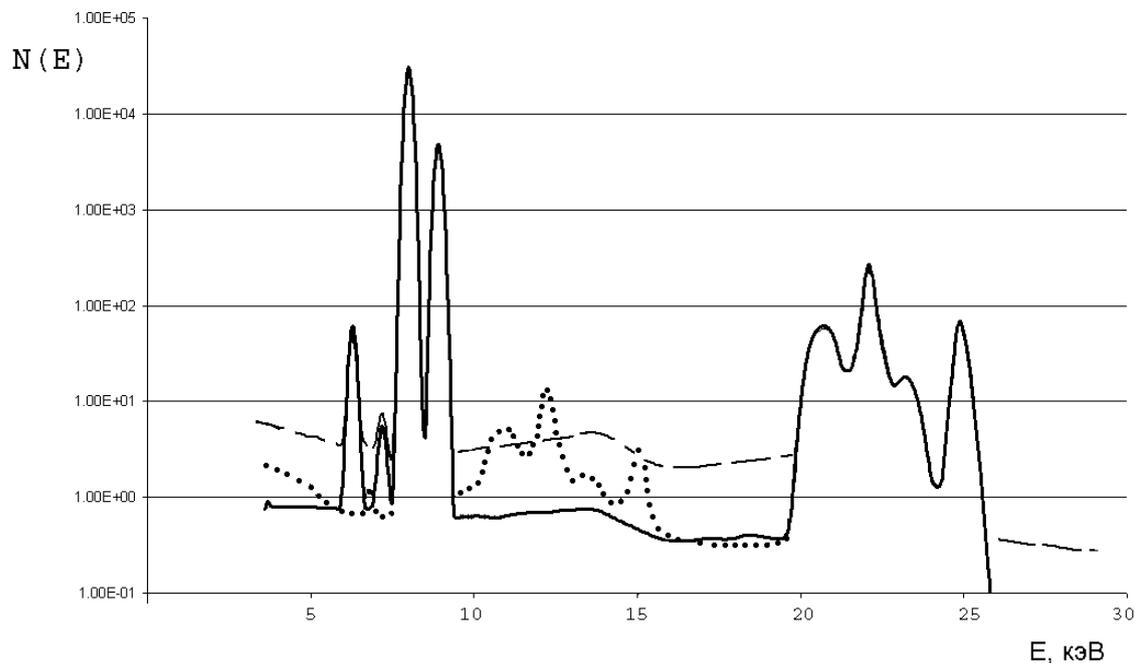


Рис. 4.7. Расчетный уровень сигнала и фона. Пунктирная линия – Si детектор (толщина 5 мм), точечная линия – Ge детектор (толщина 5 мм), непрерывная линия – комбинированный Si-Ge детектор (толщина Si детектора – 1 мм, толщина Ge детектора – 5 мм). Источник излучения – ^{109}Cd . Образец – Cu.

Следует отметить, что приведенная в данной работе модель хорошо описывает только высококачественные детекторы с тонким мертвым слоем и, соответственно, с низким уровнем фона в областях, где он обусловлен переносом электронов. В реальных условиях уровень регистрируемого фона может быть больше.

4.3. Выводы:

- предложена математическая модель комбинированных Si-Ge, Si-AsGa, Si-CdTe детекторов, состоящих из сравнительно тонкого Si детектора и толстого Ge, AsGa, CdTe детектора, основанная на анализе процессов взаимодействия излучения с веществом и переноса электронов.

- на основе данной модели рассчитаны вероятности регистрации фотона в различных областях функции отклика комбинированного детектора. Данный детектор обладает определенными преимуществами перед однослойными: вероятностью регистрации в пике полного поглощения при высоких энергиях излучения, близкая к таковой для Ge, AsGa, CdTe детектора; отсутствие провала эффективности при переходе через К край поглощения Ge (или As и Ga или Cd и Te); меньшей интенсивностью регистрации в «горбе потерь», чем для толстого Si детектора.

- рассмотрена математическая модель спектрометра с использованием подобного комбинированного детектора. В случае использования радиоизотопного источников для возбуждения флуоресценции подобный детектор будет обеспечивать наилучшее соотношение сигнал/фон по сравнению с Ge и Si детекторами.

ГЛАВА 5

Использование цифровой фильтрации амплитудных спектров при наличии априорной информации о функции отклика детектора.

Целью настоящей главы является определение основных факторов, формирующих рентгеновский фон в канале по Иоганссону, и оценка возможностей цифровой фильтрации амплитудного спектра импульсов, приходящих с детектора, для уменьшения величины измеряемого фона.

5.1. Особенности прохождения сигнала в рентгенооптических схемах по Соллеру и Иоганссону.

Одним из средств изучения структуры фона является амплитудный анализ импульсов, поступающих с детектора, поскольку энергетического разрешения газового пропорционального детектора, применяемого в аппаратуре с волновой дисперсией, достаточно для оценки спектрального состава излучения, попадающего в него после кристалл-анализатора.

Формирование измеряемого сигнала и фона определяется структурой всего спектрометрического тракта, представленной на рис. 1.1. Для изучения амплитудного распределения импульсов использовали стандартный амплитудный анализатор аппарата ARL-9800 и цифровой осциллограф со специализированным программным обеспечением, подключенный к аппарату СРМ-25М).

Энергетические спектры, формирующиеся в детекторах после кристалл-анализаторов, собранных по рентгенооптическим схемам Соллера и Иоганссона и зарегистрированные стандартным амплитудным анализатором аппарата ARL-9800 представлены на рис. 5.1 и 5.2 соответственно.

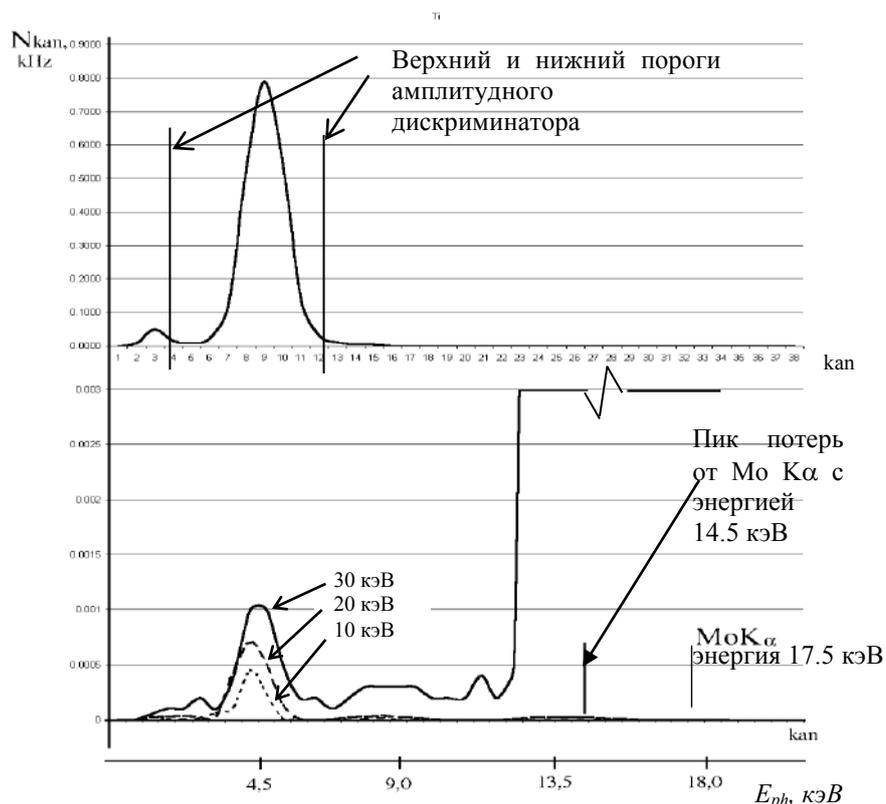


Рис. 5.1. Амплитудный спектр фонового излучения на линии Ti при использовании рентгенооптической схемы по Соллеру ($LiF\ 200$) в зависимости от напряжения, подаваемого на рентгеновскую трубку. Детектор – аргоновый проточный пропорциональный счетчик. Рентгеновская трубка – Rh (заземленный катод). Верхний спектр – образец Ti , нижний - образец – MoO_3 при напряжениях на трубке – 10, 20, 30 кВ. N_{kan} – частота счета импульсов в канале, kan – номер канала, E_{ph} – эквивалентная энергия фотона.

На рис. 5.1. приведен амплитудный спектр молибденового образца, снятый с пропорционального детектора (аргоновое наполнение) в сканирующем канале аппарата ARL-9800 (кристалл $LiF[200]$, рентгенооптическая схема по Соллеру), настроенном на линию $Ti_{K\alpha}$. Данные получены с использованием стандартного программного обеспечения ARL-9800.

Из рисунка видно, что пики с наибольшими амплитудами зарегистрированного распределения связаны с излучением молибдена, диффузно рассеянного на кристалл – анализаторе. Однако в данном случае эти пики обрезаются амплитудным дискриминатором, так что основная часть фоновых импульсов обусловлена первым порядком отражения рассеянного образцом тормозного излучения рентгеновской трубки в области $T_{K\alpha}$ линии.

Если излучение элементов пробы, диффузно рассеянное кристаллом, попадает в окно амплитудного дискриминатора, то вклад этого излучения в фоновый сигнал может стать преобладающим, что хорошо согласуется с ранее полученными данными других работ, например [245 - 247, 257].

В схеме Соллера также следует обратить внимание на увеличение интенсивности фона в случаях, когда само диффузно рассеянное излучение не попадает в окно амплитудного дискриминатора, но является причиной возникновения пиков потерь, попадающих в это окно.

Амплитудное распределение сигналов детектора, наблюдаемых для титанового канала с фокусировкой по Иоганссону (LiF [200], криптоновый пропорциональный детектор) на аппарате ARL-9800 для титанового и молибденового образца представлено на рис. 5.2. Это распределение существенно отличается от распределения импульсов канала с фокусировкой по Соллеру. В частности, в амплитудном спектре для молибденового образца преобладают амплитудные распределения 1 – 3 го порядков отражения кристалл – анализатором тормозного излучения рентгеновской трубки.

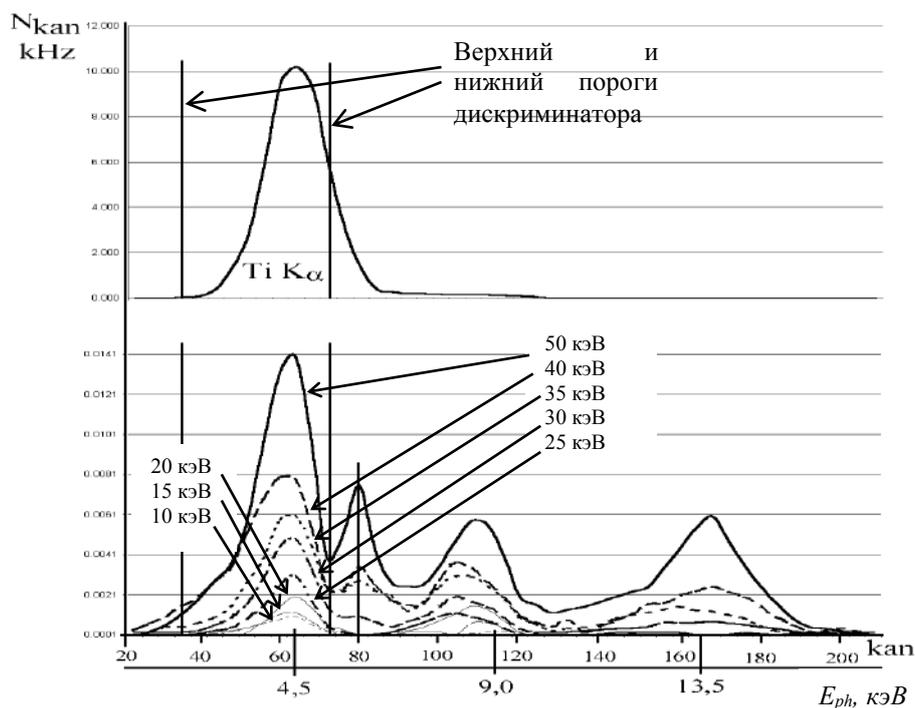


Рис. 5.2. Амплитудный спектр Ti канала спектрометра ARL-9800. Экспериментальные данные. Рентгенооптическая схема по Иоганссону, кристалл LiF(200). Газонаполненный Kr пропорциональный детектор. Верхний график – проба, содержащая 50% Ti, 20 kV. Нижний график – амплитудный спектр, поступающий с детектора, при различных напряжениях на рентгеновской трубке. Проба MoO₃. Напряжения 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 50 кВ. N_{kan} – частота счета импульсов, kan – номер канала E_{ph} – эквивалентная энергия фотона.

Дополнительный пик с энергией 6 кэВ соответствует энергии пика потерь криптона ($E_{KrK\alpha}=12$ кэВ) от четвертого порядка отражения рассеянного тормозного излучения рентгеновской трубки, хотя сама область пика четвертого порядка аппаратурой не регистрируется.

Аналогичный результат представлен на рис. 5.3а, где пик потерь в аргоновом пропорциональном детекторе Na канала от четвертого

порядка отражения тормозного излучения накладывается на пик К-линии Na.

Эксперименты, проведенные на каналах с рентгенооптическими схемами по Иоганссону на спектрометрах ARL-9800 (Ti канал) и СРМ-25М (каналы Na, Mg, Al, Ti) показали практическое отсутствие в фоновом излучении составляющих, соответствующих спектральным линиям элементов пробы, за исключением случаев наложения линий в каком-либо порядке отражения.

Таким образом, общая модель фона, представленная уравнением (1.73), должна быть дополнена возможностью появления пика фотопотерь высоких порядков отражения излучения в области 1-го порядка отражения кристалл-анализатором. Поскольку для фокусирующей схемы по Иоганссону роль диффузного рассеяния флуоресцентного излучения образца оказывается незначительной, то интенсивность фона в этом случае может быть представлена выражением

$$I_{\phi} \approx I_{p\lambda_1} + I_{p\lambda_2} + I_{nn}, \quad (5.1)$$

где I_{nn} - интенсивность пиков фотопотерь детектора.

Следует также отметить, что для канала по Иоганссону вклад в выражении (1.73), пропорциональный интенсивности флуоресценции может быть связан с процессом флуоресценция образца -> комптоновское рассеяние флуоресцентного излучения в образце -> попадание в полосу пропускания кристалл – анализатора в каком-либо порядке отражения.

Рассмотрим возможность программно-аппаратной коррекции подобных спектров, основанной на анализе полученного с детектора амплитудного распределения.

5.2. Коррекция влияния наложения амплитудных спектров методами цифровой фильтрации.

Пусть в детектор попадает излучение со спектральным составом $\frac{dN_{det}(E)}{dE}$. Отображением этого излучения является амплитудное распределение $\frac{dN_{anal}(E)}{dE}$ возникших в детекторе импульсов напряжения

$$\frac{dN_{anal}(E)}{dE} = \int \frac{dN_{det}(E_0)}{dE} \cdot K(E_0, E) \cdot dE_0, \quad (5.2)$$

где $K(E_0, E)$ - функция отклика детектора. В случае стандартной аппаратуры (рис. 5.1 а), использующей амплитудный дискриминатор, количество зарегистрированных импульсов определяется выражением:

$$N_{anal_diskr} = \int_{E_{discr_min}}^{E_{discr_max}} \frac{dN_{anal}(E)}{dE} dE \quad (5.3)$$

где E_{discr_min} и E_{discr_max} – энергии фотонов, на которые настроены верхний и нижний пороги дискриминатора соответственно.

Наложения спектров будут более существенны в длинноволновой области рентгеновского излучения, поскольку энергетическое разрешение применяемых в этой области газовых детекторов падает. Поэтому рассмотрим фильтрацию сигнала на примере Na канала (рентгенооптическая схема по Иоганссону) аппарата СРМ-25М (газонаполненный аргоновый пропорциональный детектор).

Будем считать, что поступающий в детектор спектр фотонов в основном определяется энергиями, кратными энергии линии NaK_{α} (1,05 кэВ). Этот спектр схематично представлен на рис. 5.3 а).

Из рисунка видно, что на первый порядок линии отражения NaK_{α} частично накладывается второй порядок отражения рассеянного образцом тормозного излучения с энергией 2,1 кэВ. Пик потерь аргонового счетчика от четвертого порядка отражения с энергией излучения 4,2 кэВ, соответствует энергии $4,2 - 2,95 = 1,25$ кэВ и также не может быть разделен от линии первого порядка с помощью

амплитудного анализатора. Заметим, что спектральная интенсивность рассеянного образцом тормозного излучения рентгеновской трубки в области энергий 4,2 кэВ при толщине окна рентгеновской трубки 300 мкм на несколько порядков превышает интенсивность в области NaK_α линии.

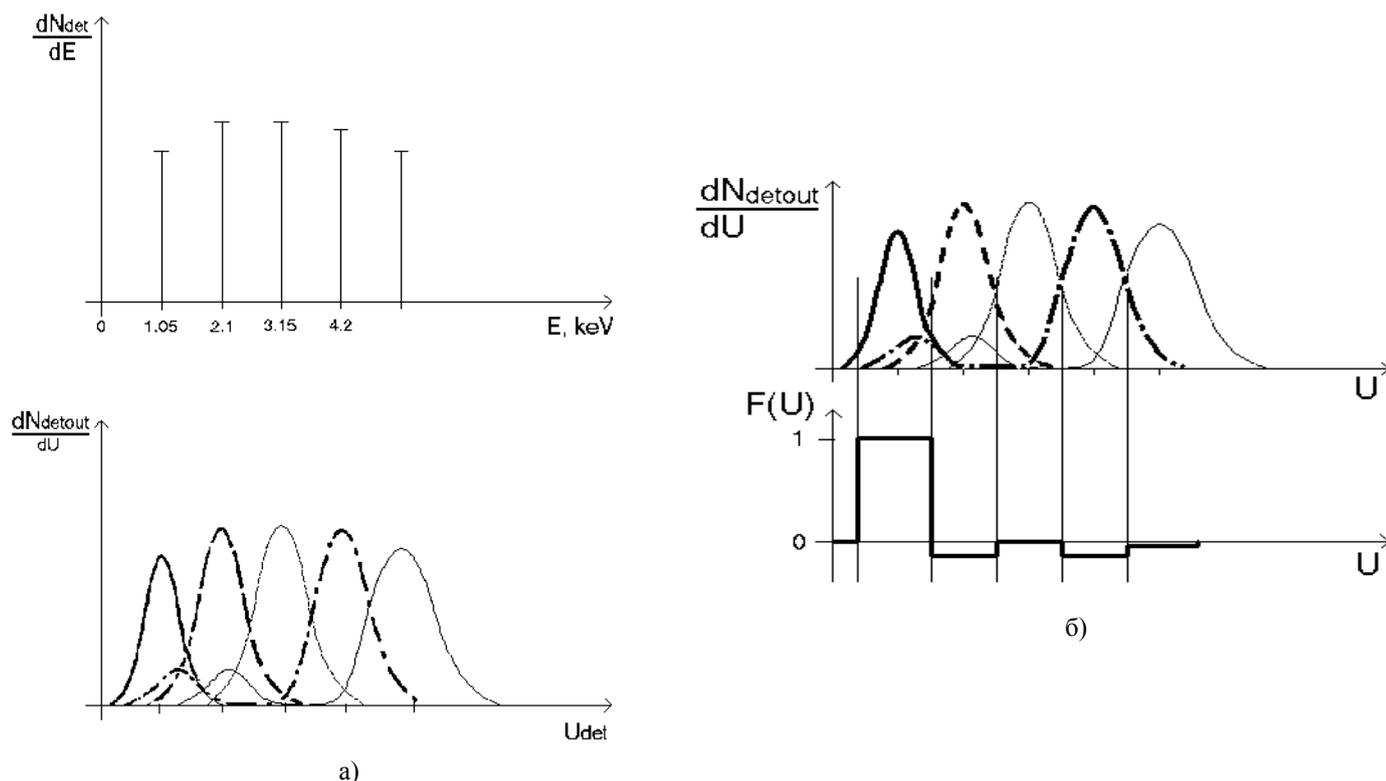


Рис. 5.3.

а) Схематичное представление энергетического спектра фотонов, поступающих в детектор рентгеновского излучения после Na канала с рентгенооптической схемой по Иоганссону и схематичный спектр импульсов напряжения, снимаемый с газового пропорционального детектора с аргоновым наполнением.

б) Один из способов построения функции фильтра $F(U)$.

Для уменьшения влияния указанных наложений на интенсивность линии На рассмотрим такую функцию $F(U)$ фильтра амплитудного распределения (U - напряжение импульса детектора), чтобы

$$\left\{ \begin{array}{l} \int_0^{U_{\max}} \frac{dN_1(U)}{dU} F(U) dU = \int_0^{U_{\max}} \frac{dN_1(U)}{dU} dU = N_1, \\ \int_0^{U_{\max}} \frac{dN_i(U)}{dU} F(U) dU = 0, \end{array} \right. \quad (5.4)$$

где $\frac{dN_1(U)}{dU}$ - амплитудное распределение, соответствующее первому порядку отражения излучения (1,05 кэВ); $\frac{dN_i(U)}{dU}$ - амплитудное распределение, соответствующее остальным порядкам отражения (в нашем случае они выбраны согласно расчетам главы 3 для Аг детектора, причем учитываются только основная линия полного поглощения и пик фотопотерь), U_{\max} выбирается так, чтобы захватить всю интересующую нас область энергий.

Функция, удовлетворяющая уравнениям (5.4), может быть построена многими способами, например, как показано на рис 5.3 б).

С точки зрения амплитудного анализа сигнала [350] оптимальным будет являться фильтр, форма которого совпадает с формой сигнала. Аналогичный, но менее наглядный подход, с использованием матричной формы представления пиков приведен, например, в [463].

Поэтому функцию $F(U)$ будем искать в виде

$$F(U) = \sum_{i=1}^{i_{\max}} F_i \frac{dN_i}{dU}, \quad (5.5)$$

где F_i – искомые коэффициенты.

На рис. 5.4 а) представлен случай, когда спектр состоит из двух функций, $\frac{dN_1}{dU}$ и $\frac{dN_2}{dU}$, а общий неразделенный спектр будет

равен $\frac{dN_{общ}}{dU} = C_1 \frac{dN_1}{dU} + C_2 \frac{dN_2}{dU}$, где C_1 и C_2 – произвольные коэффициенты,

зависящие от условий измерения.

Для этого случая выражения (5.5) преобразуются к виду

$$\left\{ \begin{array}{l} \int_0^{U_{\max}} F(U) \frac{dN_1}{dU} dU = N_{anal_discr} \\ \int_0^{U_{\max}} F(U) \frac{dN_2}{dU} dU = 0 \end{array} \right. \quad (5.6)$$

Первое уравнение в (5.6) означает условие нормировки, чтобы при присутствии в наблюдаемом спектре только нужного нам сигнала $\frac{dN_1}{dU}$ количество сосчитанных импульсов было бы такое же, как при использовании дискриминатора.

Тогда

$$\int_0^{U_{\max}} \frac{dN_{\text{ии}}}{dU} F(U) dU = N_{anal_discr} \quad (5.7)$$

или

$$\int_0^{U_{\max}} \left(C_1 \frac{dN_1}{dU} + C_2 \frac{dN_2}{dU} \right) \cdot \left(F_1 \frac{dN_1}{dU} + F_2 \frac{dN_2}{dU} \right) dU = N_{anal_discr} \quad (5.8)$$

Тогда

$$\int_0^{U_{\max}} \left(C_2 \frac{dN_2}{dU} \right) \left(F_1 \frac{dN_1}{dU} + F_2 \frac{dN_2}{dU} \right) dU = 0 \quad (5.9)$$

Поскольку выражение должно выполняться для произвольного C_2

$$F_1 \int_0^{U_{\max}} \frac{dN_2}{dU} \frac{dN_1}{dU} dU = -F_2 \int_0^{U_{\max}} \left(\frac{dN_2}{dU} \right)^2 dU \quad (5.10)$$

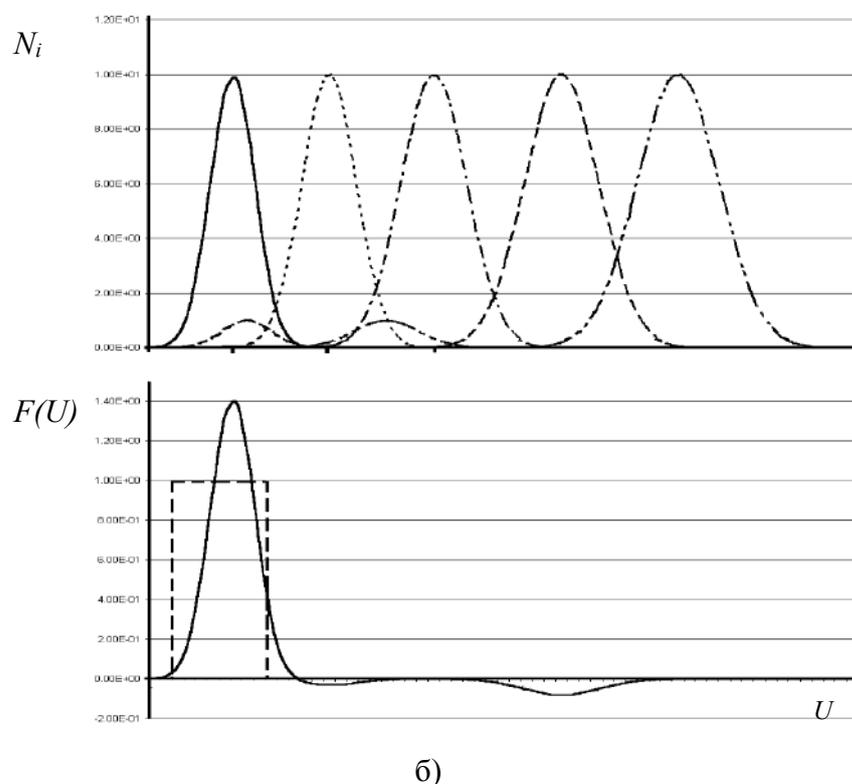
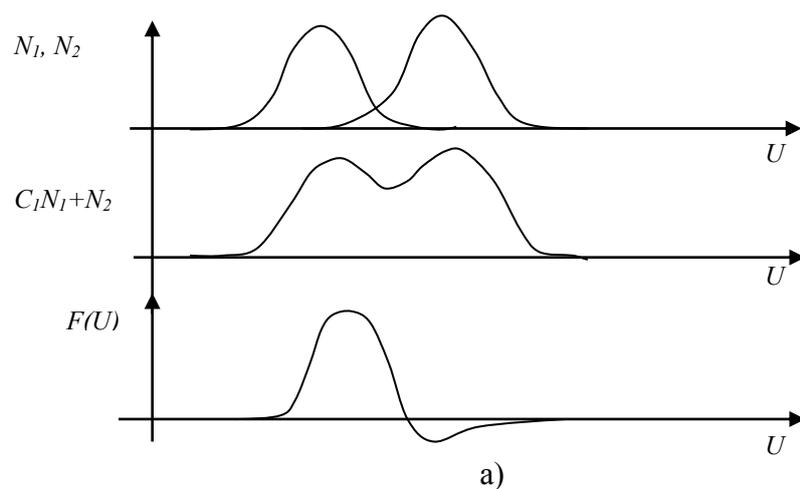


Рис. 5.4.

а) Пояснение вывода формы фильтра амплитудного распределения с учетом формы амплитудных распределений импульсов, поступающих с детектора.

б) Функция «фильтра» амплитудного распределения (5.13) для N_a канала, выполненного по рентгенооптической схеме Иоганссона (непрерывная линия) и функция «дискриминатора» (пунктирная линия).

Откуда для F_2 получаем:

$$F_2 = -F_1 \frac{\int_0^{U_{\max}} \frac{dN_2}{dU} \frac{dN_1}{dU} dU}{\int_0^{U_{\max}} \left(\frac{dN_2}{dU} \right)^2 dU} \quad (5.11)$$

Итак, функция фильтрации для данного случая

$$F(U) = F_1 \left(\frac{dN_1}{dU} - \frac{dN_2}{dU} \cdot \frac{\int_0^{U_{\max}} \frac{dN_2}{dU} \frac{dN_1}{dU} dU}{\int_0^{U_{\max}} \left(\frac{dN_2}{dU} \right)^2 dU} \right) \quad (5.12)$$

Чтобы распространить это выражение на более общий случай, будем считать, что функции $\frac{dN_i}{dU}$ являются независимыми друг относительно друга. Тогда

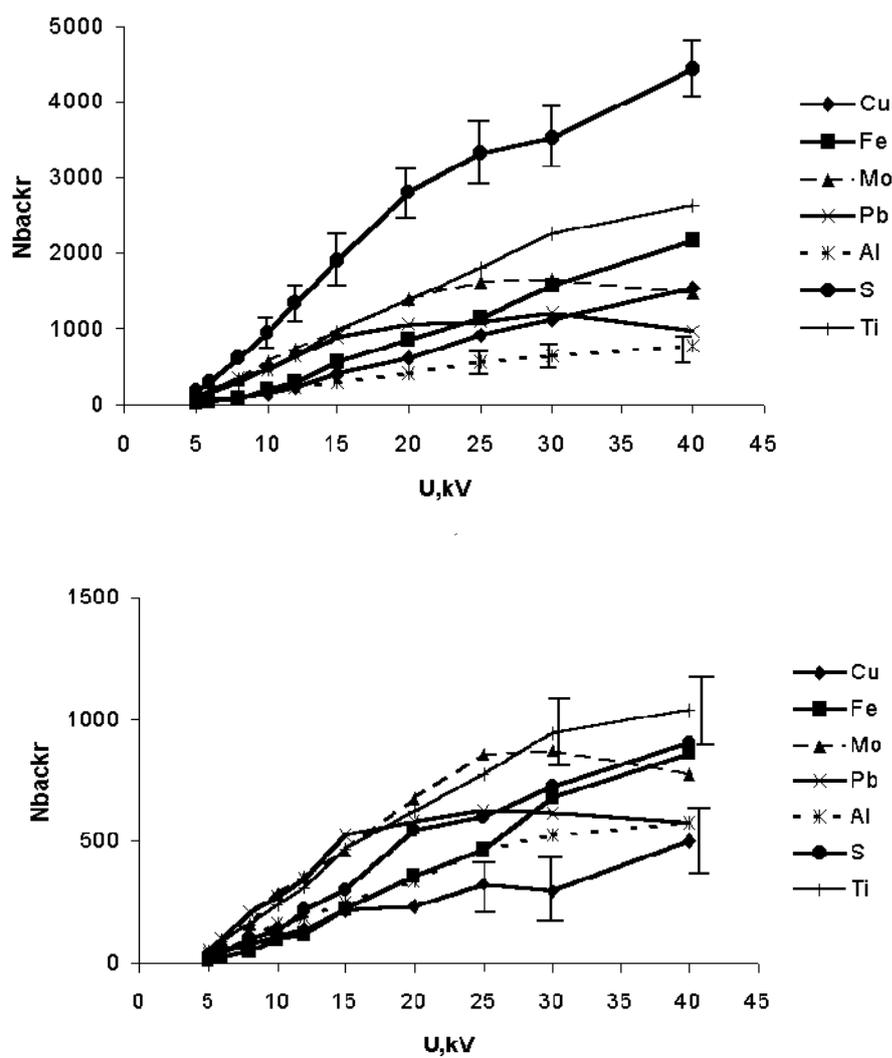
$$F(U) = F_1 \left(\frac{dN_1}{dU} - \sum_{i=2}^{\max} \frac{dN_i}{dU} \cdot \frac{\int_0^{U_{\max}} \frac{dN_i}{dU} \frac{dN_1}{dU} dU}{\int_0^{U_{\max}} \left(\frac{dN_i}{dU} \right)^2 dU} \right) \quad (5.13)$$

Произвол в выборе константы F_1 устраняется из условия нормировки (первое уравнение в (5.6)).

На рис. 5.4 б. показана функция фильтра, построенная для Na канала согласно выражению (5.13).

Результаты применения предлагаемой методики приведены на рис. 4.5 для Na канала аппарата СРМ-25М для образцов Al, S, Ti, Fe, Cu, MoO₃, Pb. Для экспериментов применялась плата цифрового осциллографа BORDO-50 со специализированным программным обеспечением. Несмотря на то, что мертвое время подобной установки достаточно велико (около 100 мкс), она может быть использована для анализа состава фона и оценки возможности применения цифровых методов фильтрации. На рис. 5.5 а) функция $F(U)$ принималась равной единице амплитудного распределения анализируемой линии и нулю в

остальной области энергий (способ дискриминатора). На рис. 5.5 б) функция $F(U)$ соответствует представленной на рис 5.4 б).



б)

Рис. 5.5. Среднее значение интенсивности измеряемого фона N_{backgr} , измеренного на Na канале аппарата СРМ-25 (кристалл – анализатор РАР) на образцах Al, S, Ti, Fe, Cu, MoO_3 , Pb. Доверительные интервалы с вероятностью 0.9 показаны для некоторых точек верхних и нижних графиков. Время сбора – 100 с.

а) способ “дискриминатора”

б) способ “фильтра”.

Из рис. 5.5 видно, что применение фильтра амплитудного распределения вместо дискриминатора позволяет на данном наборе формирующих реальную пробу элементов, уменьшить величину фона примерно в три раза. Также примерно в три раза уменьшается неопределенность фона по отношению к уровню сигнала (относительная погрешность измерения фона).

Объяснение зависимости интенсивности фона от атомного номера элементов не входит в задачи настоящей работы и является предметом дальнейших исследований. Следует отметить, что поведение интенсивности фона для серы связано, по-видимому, с близостью линии $S_{K\alpha}$ ($E=2.15$ кэВ) ко второму порядку отражения кристалл - анализатора ($E=2.1$ кэВ), см. рис. 5.6. То же самое можно сказать и про свинец, М серия которого также находится вблизи 2-го порядка отражения кристалла.

Следует отметить, что приводимая в рамках данной главы теория не учитывает некоторые неидеальности регистрирующего тракта, рассмотренные в главе 1, например, сдвиг энергетической линии при увеличении загрузки детектора, либо изменении атмосферного давления.

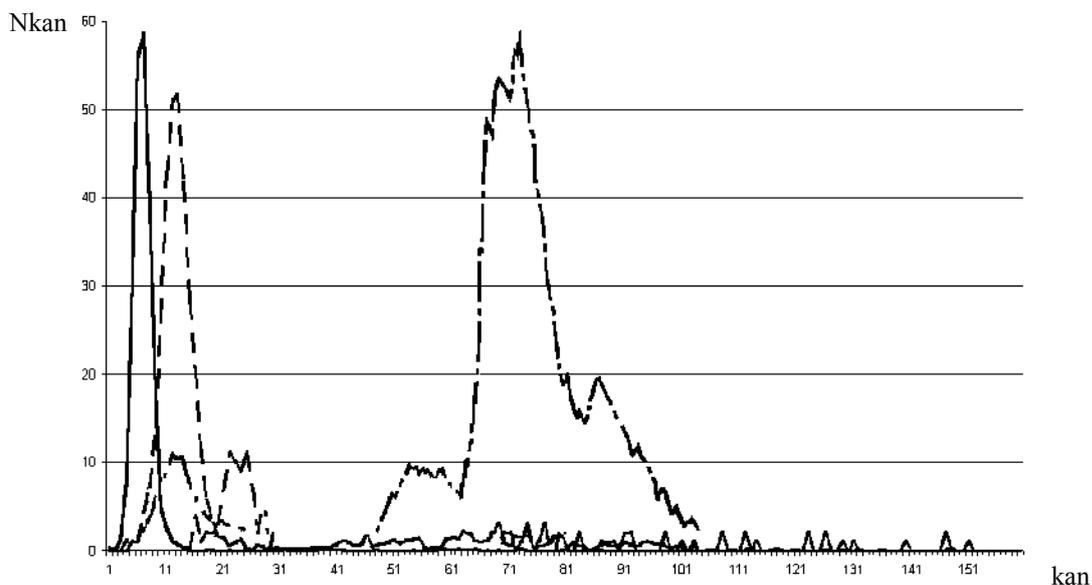


Рис. 5.6. Реальные экспериментально снятые амплитудные спектры на Na канале (спектры нормализованы по максимальной амплитуде). NaCl – непрерывная линия, S – прерывистая, Pb – штрих-пунктирная линия. Аппарат СРМ-25М. kan – номер канала амплитудного анализатора, Nkan – интенсивность в канале.

5.3. Применение фильтрации амплитудного спектра для экспериментов по подтверждению довозбуждения флуоресценции углерода фото и Оже-электронами.

Большое количество соединений, имеющих в своем составе углерод, являются кислородосодержащими, поэтому рассмотрим применение способов фильтрации на примере определения интенсивности линии углерода при разделении K_{α} линии углерода и K_{α} линии кислорода во втором порядке отражения на спектрометре ARL-9800 (сканирующий канал с рентгенооптической схемой по Соллеру, псевдокристалл AX-16, рентгеновская трубка 3GM с родиевым анодом и заземленным катодом,

толщина бериллиевого окна 0.075 мм. Режим работы спектрометра: напряжение на трубке 40 кВ, ток 20 мА).

На рис. 5.7. а) показано амплитудное распределение от линии углерода (графит), кислорода (борная кислота) и их соединения Na_2CO_3 , а также пороги дискриминации и функция фильтра для данного случая.

На рис. 5.7. б) приведена зависимость интенсивности наблюдаемой линии от угла и применяемого фильтра (в т.ч. дискриминаторов при разных порогах дискриминации). При этом интенсивность линии углерода может вычисляться как при минимальных порогах дискриминации (с последующим устранением остаточного влияния линии кислорода графическим методом), так и с помощью фильтра амплитудного распределения. Преимуществом последнего метода является большая интенсивность и, как следствие, меньшее влияние статистической погрешности измерения.

Правильность результатов расчета [464] проверена путем сопоставления экспериментальных и теоретических данных о соотношении интенсивностей рентгеновской флуоресценции углерода.

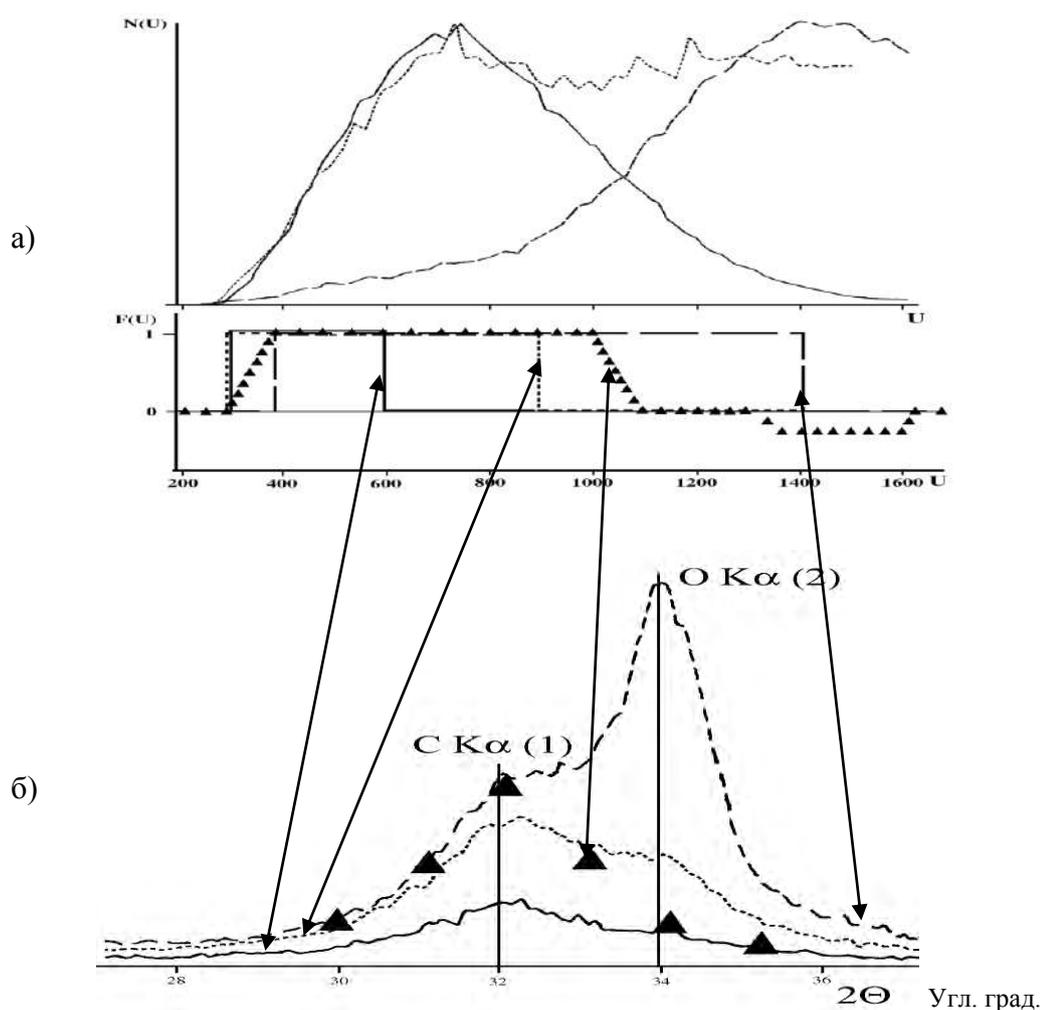


Рис.5.7. Применение фильтрации по амплитудному спектру импульсов с целью разделения $\text{K}\alpha$ линии углерода и $\text{K}\alpha$ линии кислорода во втором порядке отражения.

а) Верхняя часть рисунка: энергетическое распределение от углерода (непрерывная линия), кислорода (пунктирная линия), Na_2CO_3 (точечная линия), снятое при $2\Theta=32^\circ$. Нижняя часть рисунка: применяемые функции дискриминаторов (линии) и фильтра (малые треугольники) $F(U)$.

б) Результат сканирования вблизи линии углерода с использованием различных порогов дискриминации (штрихование линий соответствует порогам дискриминации и функции отклика (большие треугольники) на рис 5.7 а)

В таблице 5.1 сопоставлены экспериментальные и расчетные относительные интенсивности рентгеновской флуоресценции углерода в девяти различных его соединениях, а также расчетные значения рассматриваемых относительных интенсивностей без учета ионизации атомов углерода фото- и Оже электронами. Интенсивности отнесены к интенсивности линии углерода в графите.

Также в таблице 5.1 приведены экспериментальные данные, полученные с использованием стандартно настроенного дискриминатора прибора (пунктирная линия на рис. 5.7). Видно, что из-за наложения линии кислорода во втором порядке отражения на линию углерода происходит завышение интенсивности линии углерода в кислородосодержащих соединениях.

Из таблицы 5.1 видно, что экспериментальные данные хорошо согласуются с результатами расчетов, учитывающих влияние фото- и Оже электронов, и сильно расходятся с интенсивностями, вычисленными без учета этого влияния. Полученное согласие позволяет считать также достоверными другие результаты, найденные путем расчета.

Следует отметить, что согласие расчетных и экспериментальных данных, которые показывают значимость процессов довозбуждения флуоресценции фото и Оже электронами, стало возможно только после устранения наложения второго порядка линии кислорода, которое является в данном случае особенно значимым из-за плохого энергетического разрешения детектора и псевдокристалла.

Таблица 5.1.

Сопоставление экспериментальных и расчетных значений отношения интенсивности углерода в различных соединениях к его интенсивности в графите.

Соединение	Эксперимент	Эксперимент со стандартными порогами дискриминации	Расчет	
			С учетом фото-и Оже электронов	Без учета фото-и Оже электронов
CaCO ₃	0.088 ±0.004	0.115±0.008	0.085	0.054
K ₃ Fe(CN) ₆	0.140 ±0.008	0.140 ±0.008	0.139	0.084
K ₄ Fe(CN) ₆	0.121 ±0.008	0.121 ±0.008	0.120	0.073
K ₂ CO ₃	0.074 ±0.004	0.095±0.005	0.075	0.042
NaHCO ₃	0.071 ±0.004	0.093±0.005	0.069	0.041
Na ₂ CO ₃	0.049 ±0.004	0.072±0.005	0.044	0.029
Li ₂ CO ₃	0.086 ±0.004	0.112±0.008	0.087	0.080
MgCO ₃	0.050 ±0.004	0.074±0.005	0.051	0.035

5.4. Способ измерения интенсивности линии гамма излучения

Целью данной части работы является уменьшение величины статистической погрешности, связанной с флуктуациями счета импульсов, за счет учета регистрации импульсов в низкоэнергетическом горбе потерь, возникающем в области низких энергий регистрируемого излучения при комптоновском рассеянии гамма фотона в детекторе с последующим выходом рассеянного фотона из детектора.

Из рассмотрения сечений взаимодействия излучения с веществом видно, что в гамма области излучения при энергиях фотона до нескольких МэВ основным процессом, приводящим к поглощению фотона, является комптоновское рассеяние, при этом существует

значительная вероятность того, что после комптоновского рассеяния фотон покинет детектор.

Детальное описание взаимодействия фотона с веществом детектора приведено в главе 2. Следует отметить, что в гамма области излучения при энергии излучения до нескольких МэВ наиболее вероятными процессами являются регистрация фотона в пике полного поглощения и в горбе потерь, в результате комптоновского рассеяния фотона, причем более вероятным событием является регистрация в горбе потерь.

Это обуславливает возможность использования подобных событий для уточнения результатов измерения интенсивности спектральной линии.

Для численной оценки результатов многократных взаимодействий излучения с веществом детектора может быть использован метод Монте-Карло, который позволяет учесть геометрические особенности детектора и возможность многократных взаимодействий.

На рис. 2.9 показаны зависимости вероятности полного поглощения энергии фотона в детекторе, регистрации фотона в горбе потерь (толстая непрерывная линия) для Ge детектора толщиной 5 мм от энергии фотона. Из этого рисунка видно, что в области энергий фотона примерно 250 кэВ и выше для Ge детектора вероятность регистрации в горбе потерь будет выше, чем вероятность регистрации в пике полного поглощения.

При рассмотрении спектра, регистрируемого детектором, обычно к сигналу относят часть спектра, регистрируемую в пиках полного поглощения, а часть спектра, регистрируемую в горбе потерь, относят к мешающему фону. Однако, эта часть спектра (горб потерь) также несет информацию об интенсивности регистрируемой спектральной линии, и может использоваться для уточнения информации об интенсивности регистрируемой спектральной линии, поскольку интенсивность

регистрации в этой области спектра выше, чем вероятность регистрации в пике полного поглощения.

Исходя из сказанного выше, становится возможным следующий способ гамма спектрометрии, заключающийся в последовательности действий со спектром, зарегистрированным гамма спектрометром:

1. Измерение энергии спектральной линии E_0 ;
2. Вычисление максимальной энергии электронов отдачи $E_{\text{комп_эл_max}}(E_0)$;
3. Измерение площади горба потерь;
4. Вычисление интенсивности падающего на детектор излучения с энергией E_0 , как отношения площади горба потерь к вероятности регистрации излучения с данной энергией в горбе потерь.

Исходя из того, что интенсивность регистрации гамма фотонов Ge детектором с энергиями от 250 кэВ до нескольких МэВ в горбе потерь существенно выше интенсивности регистрации в пике полного поглощения, результатом применения подобного алгоритма является уменьшение статистических флуктуаций счета импульсов.

5.5. Выводы:

- на основании экспериментальных данных об амплитудном спектре импульсов, поступающих с детектора в систему регистрации в каналах, выполненных по рентгенооптическим схемам Соллера и Иоганссона показана различная значимость диффузно рассеянного излучения: в схеме Иоганссона на спектрометрах ARL-9800 (Ti канал) и СРМ-25М (каналы Na, Mg, Al, Ti) эксперименты с использованием амплитудных анализаторов показали практическое отсутствие спектров, соответствующих диффузно рассеянному излучению;

- интенсивность фона будет увеличиваться в случае, когда само отраженное кристалл – анализатором в высоких порядках отражения или рассеянное диффузно излучение не попадает в окно амплитудного дискриминатора, но является причиной возникновения пиков потерь, попадающих в это окно;

- предложена методика коррекции влияния наложений амплитудных спектров, основанная на анализе формы принятого детектором амплитудного распределения импульсов; применение метода на Na канале аппарата СРМ-25 позволило примерно в три раза уменьшить величину и неопределенность фона, связанного с влиянием 2 – го и 4-го порядка отражения на кристалле;

- применение методик коррекции влияния наложений амплитудных спектров обеспечило хорошее согласие расчетных и экспериментальных данных при учете возбуждения флуоресценции углерода фото и Оже электронами, возникающими в веществе;

- предложен способ измерения интенсивности гамма излучения с уменьшением статистической погрешности счета, заключающийся в том, что при расчете интенсивности учитывается интенсивность регистрации как в пике полного поглощения, так и в горбе потерь, обусловленном регистрацией части энергии фотона в детекторе после его комптоновского рассеяния.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Настоящая работа представляет собой исследование, направленное на изучение процессов формирования сигнала и фона в рентгенофлуоресцентной аппаратуре и уменьшение влияние фона при регистрации измеряемого сигнала.

Основные результаты и выводы работы сводятся к следующему.

Впервые с точки зрения развития теории РФА, а в конечном счете – с точки зрения проектирования аппаратуры РФА, приведена комплексная модель, позволяющая анализировать процессы переноса энергии излучением как в образце, так и в веществе детектора.

В результате проведенных исследований автора, а также более поздних работ других авторов показано, что без учета процессов переноса энергии фотонов и электронов в детекторе невозможно с приемлемой точностью описать и промоделировать формирование фонового спектра в рентгеновской области спектра.

Предложена комплексная математическая модель детектора рентгеновского излучения, учитывающая как процессы переноса излучения, так и электронов высоких и низких энергий. Модель позволяет с помощью метода Монте-Карло рассчитывать функцию отклика детектора и параметры данной функции в зависимости от энергии излучения.

С помощью предложенной модели методом Монте-Карло рассчитаны вероятности регистрации фотона в различных областях функции отклика детектора для Si и Ge детекторов различной толщины активного и мертвого слоев. Данные расчетов сопоставлены с имеющимися экспериментальными, получено удовлетворительное согласие. Процессы переноса излучения и его поглощения будут существенно ограничивать пространственное разрешение координатно-чувствительных детекторов. Также промоделированы функции отклика

газовых пропорциональных детекторов с различными наполнителями и сцинтиллятора NaI(Tl).

Показана возможность расчета сигнала и фона в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе на основе комплексного рассмотрения переноса излучения в образце и детекторе. Для установок энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа с радиоизотопным возбуждением необходимо учитывать разброс углов рассеяния в системе источник излучения – образец – детектор реального спектрометра для описания формы пика комптоновского рассеяния. Предложена модель, описывающая процессы рассеяния для такой системы и позволяющая рассчитать соотношение интенсивностей однократных процессов флуоресценции, когерентного и комптоновского рассеяния, тормозного излучения фото-, Оже-, комптоновских электронов, возникающих в образце. Показана возможность расчета и оптимизации контрастности при использовании различных источников излучения и различных детекторов.

Разработаны теоретические основы для комбинированных детекторов, имеющих в качестве первого слоя тонкий Si детектор, а в качестве второго слоя – Ge, AsGa, CdTe детекторы, причем одновременные события для первого и второго детекторов должны регистрироваться схемой антисовпадений. Для таких детекторов вероятности регистрации в пиках потерь второго детектора существенно ниже, по сравнению с пиком потерь такого одиночного детектора, вероятность регистрации в горбе потерь, обусловленном выходом комптоновски рассеянного излучения существенно ниже, чем для толстого кремниевого детектора, и вероятность полного поглощения (эффективность) для фотонов высоких энергий соответствует такой вероятности для одиночного второго детектора. В некоторых случаях при применении в спектрометрах подобный детектор будет обеспечивать

лучшую контрастность по сравнению с одиночными Si и Ge детекторами.

Предложенный способ фильтрации амплитудного спектра, основанный на использовании информации о функции отклика пропорционального детектора позволяет уменьшить фон. Применение способа для Na канала по Иоганссону спектрометра с волновой дисперсией при аргоновом наполнении детектора позволяет снизить уровень фона и его неопределенность примерно в 3 раза при сохранении уровня сигнала.

Результаты работы могут являться основой как для совершенствования рентгенофлуоресцентной аппаратуры, так и методик анализа.

Список публикаций по теме диссертации

1. Павлинский Г.В., Паньков Л.В., Портной А.Ю. Экспериментальная установка для неразрушающего контроля толщины и состава тонкослойных объектов. Тезисы конференции "Неразрушающий контроль в науке и индустрии – 94". – Москва, 1994. –С. 186.

2. Павлинский Г.В., Портной А.Ю. Аналитические параметры экспериментальной установки для рентгенофлуоресцентного неразрушающего контроля состава и толщины тонкослойных объектов Тезисы «Национальной конференции по применению рентгеновского, синхротронного излучений, нейтронов и электронов для исследования материалов», Дубна, 1997, - С. 613.

3. Pavlinsky G.V., Portnoy A.Yu. Calculating the spectral distribution of radiation from X-ray tube with grounded cathode. International Symposium on Radiation Physic (Abstract booklet). – Prague, 2000. – p.258.

4. Павлинский Г.В., Портной А.Ю. Спектральный состав излучения рентгеновских трубок с заземленным катодом. Тезисы VI Конференции «Аналитика Сибири и Дальнего Востока». – Новосибирск, 2000. – С. 99-100.

5. Павлинский Г.В., Портной А.Ю. Влияние полярности подключения рентгеновской трубки на интенсивность рентгеновской флуоресценции Тезисы докладов XV Уральской конференции по спектроскопии. – г. Заречный, 2001. – С.80-81.

6. Павлинский Г.В., Духанин А.Ю., Портной А.Ю. Кюн А.В. Роль фото- и Оже электронов при возбуждении рентгеновской флуоресценции углерода излучением рентгеновской трубки 3GM Тезисы докладов XV Уральской конференции по спектроскопии. – г. Заречный, 2001. – С. 77-79

7. Pavlinsky G.V., Portnoy A.Yu. Calculating the spectral distribution of radiation from X-ray tube with grounded cathode // *Radiation Physics and Chemistry*. – 2001. – v.62, N.2-3. – pp. 207-213.

8. Pavlinsky G.V., Portnoy A.Yu. Formation features of radiation from X-ray tube with grounded cathode // *X-Ray Spectrometry*. – 2002. – v.31, no.3. – pp. 247-251.

9. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Зузаан П., Эрдемчимег Б.О. формировании фона в длинноволновой области рентгеновского спектра при возбуждении флуоресценции излучением радиоизотопных источников Тезисы докладов IV Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Иркутск, 2002. – С. 40.

10. Духанин А.Ю., Павлинский Г.В., Портной А.Ю. Кюн А.В. Вклад фото- и Оже электронов в формирование интенсивности углерода при первичном излучении тонкоконных рентгеновских трубок // *Аналитика и контроль*. – 2002. – т.6, №4. – С.383-389

11. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Духанин А.Ю., Зузаан П., Эрдемчимег Б. Расчет тормозного спектра электронов отдачи, возникающего при возбуждении рентгеновской флуоресценции излучением радиоактивных источников // *Аналитика и контроль*. – 2002. – т.6, №4. – С. 390-394.

12. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Духанин А.Ю., Зузаан П., Эрдемчимег Б. Формирование аналитического сигнала и фона в флуоресцентном рентгенорадиометрическом анализе при использовании радиоактивного источника ^{241}Am и Si(Li) детектора // *ЖАХ*. – 2004. – № 11. – С. 1171-1180.

13. Портной А.Ю. Павлинский Г.В. Исследование функции отклика детекторов рентгеновского излучения методом Монте-Карло. Тезисы VII конференции «Аналитика Сибири и Дальнего Востока». – Новосибирск, 2004, т.2, с.58

14. Портной А.Ю. Павлинский Г.В. Использование сведений об амплитудном спектре регистрируемого сигнала для уменьшения фона в каналах Иоганссона рентгеновских спектрометров. Тезисы VII конференции «Аналитика Сибири и Дальнего Востока». – Новосибирск, 2004, - т.2, С.59.

15. Портной А.Ю. Павлинский Г.В. Формирование аналитического сигнала и фона в EXDRF при использовании радиоизотопов ^{241}Am ^{109}Cd и Si(Li) детектора. Тезисы VII конференции «Аналитика Сибири и Дальнего Востока». – Новосибирск, 2004, - т.1, С.77.

16. Портной А.Ю. Павлинский Г.В. Исследование процессов переноса и поглощения энергии в твердотельных детекторах рентгеновского и гамма излучения. Тезисы 9 международной школы – семинара по люминесценции и лазерной физике. – Иркутск, 2004. – С.102-103.

17. Pavlinsky G.V., Dukhanin A.Yu., Portnoy A.Yu., Kjun A.V. Excitation of low-Z fluorescence by radiation from thin-window x-ray tubes // Radiation Physics and Chemistry. – 2005. – v.72, N 4. – pp. 429-435.

18. Dukhanin A.Yu., Pavlinsky G.V., Baranov E.O., Portnoy A.Yu., Kjun A.V. Influence of photo and Auger electrons of the elements with high numbers on carbon x-ray fluorescence intensity // X-ray spectrometry. – 2006. v.35 pp.34-39

19. Портной А.Ю. Павлинский Г.В. Использование фильтрации амплитудного распределения для уменьшения фона в рентгено флуоресцентном анализе // ЖАХ. -2005. т.60, № 9, С.944-951.

20. Павлинский Г.В., Духанин А.Ю., Портной А.Ю. Баранов Е.О Теоретические основы применения способа фундаментальных параметров при рентгенофлуоресцентном определении элементов с малыми атомными номерами // ЖАХ. – 2006. т.61, № 7, С.710-717

21. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С., Баранов Е.О. Оценка возможности оптимизации соотношения сигнал/фон в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе. Тезисы докладов V Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Иркутск, 2006. – С. 72.

22. Павлинский Г.В., Горбунов М.С., Портной А.Ю. Соотношение интенсивностей тормозного излучения фото-, Оже- и комптоновских электронов, возникающих в облучаемом материале. Тезисы докладов V Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Иркутск, 2006. – С. 90.

23. Китов Б.И., Портной А.Ю. Чуринова О.В., Мышков В.Г., Пашков Н.Н., Петрушин В.И., Ляхов Н.Н. Перспективы применения рентгеновских методов исследования на железнодорожном транспорте. Тезисы докладов V Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Иркутск, 2006. – С. 91.

24. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С., Баранов Е.О., Зузаан П. Об оптимизации соотношения сигнал/фон в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе // ЖАХ. – 2009. т.64, № 5, С.511-520.

25. Павлинский Г.В., Горбунов М.Ю., Баранов Е.О. Об оптимизации соотношения сигнал/фон в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе Тезисы докладов VI Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Краснодар, 2008. – С.102

26. Портной А.Ю., Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Метод оценки энергетических и пространственных параметров рентгеновских и гамма детекторов в области энергий до 1 МэВ. Тезисы докладов конференции Неразрушающий контроль и диагностика, Томск, 2008 С.110.

27. Portnoy A.Yu., Pavlinsky G.V., Gorbunov M.S. An estimation of the signal to background ratio limited by photon and electron transport in EDXRF // X-ray spectrometry, 2010, v. 39, N1, pp. 41-51

28. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Комбинированный полупроводниковый детектор рентгеновского излучения. Патент на изобретение, 2011 № RU 2413244

29. Портной А.Ю. Метод оценки энергетических и пространственных параметров рентгеновских и гамма детекторов // Научное приборостроение, 2009 т. 19, № 4, 13-23

30. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Об оценке свойств комбинированного двухслойного рентгеновского детектора // Научное приборостроение, 2010, т.20, с. 39-45

31. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Портной А.Ю. Тормозное излучение свободных электронов, возникающих в облучаемом образце // Известия высших учебных заведений. Физика., 2009, №7 с. 25-32

32. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Сидорова Ю.И. Оценка свойств рентгеновского флуоресцентного энергодисперсионного спектрометра на основе двухслойного комбинированного детектора. // ЖАХ, 2012, т. 67, № 3, с. 274-281.

33. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Сидорова Ю.И. Об особенностях фона, обусловленных переносом и сбором электронов в Si детекторе // Научное приборостроение, 2011, т.21, №4, с. 145-150.

34. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Сидорова Ю.И. Свойства двухслойных комбинированных детекторов и рентгеновских флуоресцентных энергодисперсионных спектрометров на их основе // Научное приборостроение, 2012, т.22, №1, с.25-35.

35. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. О параметрах двухслойных комбинированных детекторов рентгеновского излучения. Тезисы докладов VI Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Новосибирск, 2011. – С.19.

36. Портной А.Ю. Павлинский Г.В., Горбунов М.С. Сидорова Ю.И. Об оценке свойств энергодисперсионного спектрометра на базе многослойных комбинированных детекторов. Тезисы докладов VI Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Новосибирск, 2011. – С.20.

37. Портной А.Ю., Карпукова О.М., Сидорова Ю.И. О рентгеноспектральном определении состава загрязнений изоляции электровозов. Тезисы докладов VI Всероссийской конференции по рентгеноспектральному анализу. – г. Новосибирск, 2011. – С.108

38. Portnoy A.Yu, Pavlinsky G.V., Gorbunov M.S., Sidorova Yu.I. An estimation of EDXRF spectrometer properties, based on a two-layer composite Si-Ge detector // X-ray spectrometry, 2012, v. 41, pp. 298-303.

39. Горбунов М.С., Портной А.Ю. Павлинский Г.В. Оценка влияния геометрии энергодисперсионного рентгеновского спектрометра на форму спектра при учете многократного рассеяния // Научное приборостроение, 2014, т.24, №3, с.16-21.

40. Портной А.Ю., Павлинский Г.В., Горбунов М.С., Сидорова Ю.И. Способ гамма спектрометрии. Патент на изобретение. 2014, № RU 2523081.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Афонин В.П., Комяк Н.И., Николаев В.П., Плотников Р.И. Рентгенофлуоресцентный анализ. – Новосибирск: Наука, 1991. – 173 с.
2. Глушковский М.Е. Быстродействующие амплитудные анализаторы в современной ядерной физике. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 128 с.
3. Helliwell J.R. Synchrotron radiation and crystallography: the first 50 years // Acta cryst. A. 1998. V. 54. P. 738-749.
4. Фетисов Г.В. Синхротронное излучение. Методы исследования структуры веществ. М.: ФИЗМАТЛИТ. 2007. – 672 с.
5. Иваненко Д.Д., Соколов А.А. К теории светящегося электрона // Докл. АН СССР, 1948, Т.59, С.1551.
6. Schwinger J. On the classical radiation of accelerated electrons // Phys. Rev. 1949, v.75, pp. 1912-1925.
7. Navrotski G. A synchrotron radiation primer. Product catalog 2004-2005. Advanced Design Consulting USA Inc. 2004. Sect. 3. 21 p.
8. Hogan M.G. et al. Measurement of gain larger than 10⁵ at 12 mkm in self amplified spontaneous emission free electron laser // Phys. Rev. Lett. 1998, v.81, pp. 4867-4870.
9. Flegel L., Rossbach J. Towards the ultimate X-ray source: the X-ray lasers. Cern: Courier, 2000, v.40, N6, pp. 26-28.
10. Bonifacio R. Piovela N., Cola M.M., Volpe L. Experimental requirements for x-ray compact free electron lasers with laser wiggler // Nuclear instruments and methods A 577 (2007) pp. 745-750.
11. Артюнян Ф.Р., Туманян В.А. Комптон эффект на релятивистских электронах и возможности получения пучков жестких гамма квантов // ЖЭТФ. 1963. Т. 44. С.2100-2102.

-
12. Артюнян Ф.Р., Туманян В.А. Квазимонохроматические поляризованные гамма кванты высокой энергии // УФН. 1964. Т. 83. С. 3-34.
 13. Milburn R.H. Electron scattering by an intense polarized photon field. // Phys. Rev. Lett. 1963. V.10. PP. 75-77.
 14. Blum E.B. A storage ring based inverse Compton scattering angiography source. DOE OSTI Technical Report No BNL-49587. Brookhaven National Lab. Sep. 1993. 7 p.
 15. Mourou G.A., Barty C.P.J., Perry M.D. Ultrahigh intensity lasers: physics of the extreme on tabletop // Physics today. 1998. V. 51, No. 1, pp. 22-28.
 16. Mourou G. Umstadter D. Extreme light // Scientific American. v. 286. May 2002. pp. 80-86.
 17. Бессонов Е.Г., Виноградов А.В., Турьянский А.Г. Лазерно-электронный источник рентгеновского излучения для медицинских применений // Приборы и техника эксперимента, 2002, № 5, с. 142-148.
 18. Потылицин А.П. Излучение релятивистских электронов: Учебное пособие, Томск, изд. ТПУ, 2005, 115 с.
 19. Boyce J.R., Benson S.V., Bohn C.L., Douglas D.R. Dylla H.F. Gubeli J.F., Harpek U., Jordan K., Krafft J.A., Neil G.R., Piot P., Shinn M.D., Williams J.P. The Jefferson Lab sub-picosecond x-ray program. Conference on the application of accelerators in research and industry (CAARI 2002), 12-16 November, 2002, Denton.
 20. Плотников Р.И., Пшеничный Г.А. Флуоресцентный рентгенорадиометрический анализ. – М.:Атомиздат, 1973. – 264 с.
 21. Аликов Б.А. Громов К.Я., Морозов В.А., Муминов Т.М., Филиппов В.Ф., Фоминых В.И., Фоминых М.И., Цупко-Ситников В.М. Атлас спектров гамма-лучей радиоактивных изотопов. – Ташкент:Узбекистан, 1973. – 115 с.

-
22. Джелепов Б.С., Пекер Л.К. Схемы распада радиоактивных ядер. – Издательство АН СССР, М.:, Ленинград, 1958. – 820 с.
 23. Bethe H. Zur Theorie des durchgang schneller korpuskularstrahlen durch materie // *Annalen der Physik (Leipzig)*. – 1930. – v.397 N3, – s. 325-400.
 24. Павлова Л.А., Парадина Л.Ф. Рентгеноспектральный микроанализ и его применение в минералогии. – Якутск: Якутский центр СО РАН, 1990. – 185 с.
 25. Борходоев В.Я. Рентгенофлуоресцентный анализ горных пород способом фундаментальных параметров. – Магадан: СВКНИИ ДВО РАН, 1999. – 279 с.
 26. Лаврентьев Ю.Г., Королюк В.Н., Усова Л.В. Второе поколение методов коррекции в рентгеноспектральном микроанализе: аппроксимационные модели функции распределения излучения по глубине // *Журнал аналитической химии*. – 2004. – т. 59, №7. – С. 678-696.
 27. Whiddington R. The transmission of cathode rays through matter. *Proc. Roy. Soc. A*. 86 (1912) 360-370.
 28. Рид С. Электронно – зондовый микроанализ. – М.:Мир, 1979. 423 с.
 29. Riveros J., Castellano G. Review of $\phi(\rho z)$ curves in electron probe microanalysis. *X-ray spectrometry*, v. 22, 1993, pp. 3-10.
 30. Bloh F. Bremsvermogen von atomen mit mehreren elektronen // *Zeit. Phys.* – 1933. – Bd. 81. – s. 363-376.
 31. Duncumb P. Shields-Mason P.K. Da Casa C.: *Proc. 5th Int. Congr. on X-ray optics and microanalysis*. – Springer, Berlin, 1969. – p. 146.
 32. Berger M., Seltzer S. *Tables of Energy Losses and Ranges of Electrons and Positrons*. National academy of science, National Research council publ. 1133, Washington, D.C. 1964. – p. 205.

-
33. Wilson R. Range and ionization measurements on high speed protons // Phys. rev. 60, 1941, pp. 749-753.
34. Финкельштейн А.Л., Павлова Т.О. О расчете спектрального распределения излучения рентгеновских трубок в рентгенофлуоресцентном анализе // Заводская лаборатория. – 1996, № 12. – С. 16 – 20.
35. Finkelshtein A.L., Pavlova T.O. Calculation of X-ray tube distribution. X-ray spectrometry, v.28, 1999, pp. 27-32.
36. Kramers H. On the theory of X-ray absorption and of the continues X-ray spectrum // Phil. Mag. – 1923. – v. 46. – pp. 836-871.
37. Амусья М.Я., Кучиев М.Ю., Король А.В., Соловьев А.В. Тормозное излучение в атом-атомных столкновениях// ЖЭТФ 1985 - т.88 - с. 1512-1521.
38. Singh T., K.S.Kahlon, A.S.Dhaliwal/ Total Bremsstrahlung Cross Section for Al, Ti, Sn, and Pb at incident electron energy of 10, 50 and 100 keV// Asian Journal of chemistry. V.21, No.10, 2009, pp. 233-236.
39. Bethe H., Nietler W., On the stopping of fast particles and on the creation of positive electrons. Proc. R.Soc. London, Ser. A. v.14, pp. 83-112 (1934).
40. Амусья М.Я. Тормозное излучение. М.Энергоатомиздат, 1990, 203 с.
41. Avodina N.B., Pratt R.H. Bremsstrahlung spectra from atoms and ions at low relativistic energies // J.Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. v.32. pp. 4261-4276 (1999).
42. Williams S. Hayton K. Quarles C.A. Target thickness dependence of 50 keV electron bremsstrahlung // Nuclear instruments and methods B 261 (2007), pp. 184-188.
43. Поташевская Т.Г. Рентгеновские трубки с анодом прострельного типа // Аппаратура и методы рентгеновского анализа, – Л.:Машиностроение, 1985. – №34. – С. 111-129.

-
44. Лебедь В.И., Афонин В.П. Расчет спектральной интенсивности рентгеновских трубок с анодами прострельного типа // Заводская лаборатория – 1983. – т. 49, № 2. – С. 26-29.
45. Loomis T.C., Keith H.D. Spectral distribution of x-rays produced by a General electric EA 75 Cr/W tube at various applied constant voltages// x-ray spectrometry, 1976, v.5, pp. 104-114.
46. Arai T., Shoji T., Omote K. Measurement of the spectral distribution emitted from spectrographic tubes // Advances in x-ray analysis. – 1986. – v.29. – pp. 413-422.
47. Kirkpatrick P. Wiedman L. Theoretical continuous X-ray energy and polarization // Physical Review. – 1945. – v. 67, № 11. – pp. 321-329.
48. Reed S.J.R. The shape of the continuous x-ray spectrum and background correction for energy – dispersive electron microprobe analysis // X-ray spectrometry. – 1975. – v.4, № 1. – pp. 14-17.
49. Statham P.J. The generation, absorption and anisotropy of thick target bremsstrahlung and implication for quantitative energy disperse analysis // X-ray spectrometry. – 1976. – v.5, № 3. – pp. 154-167.
50. Pella P.A., Feng L., Small J.A. An analytical algorithm for calculation of spectral distributions of x-ray tubes for quantitative x-ray fluorescence analysis. // X-ray spectrometry v. 14, No 3, 1985, pp. 125-135.
51. Ebel H., Ebel F.M., Wernisch J. Poehn C. Wiederschwinger H. Quantification of continuous and characteristic tube spectra for fundamental parameter analysis // X-ray spectrometry, v. 18, 1989, pp. 89-100.
52. Ebel H. X-ray tube spectra // X-ray spectrometry, v.28, 1999, pp. 255-266.
53. Philibert J. A method for calculating the absorption corrections in electron probe microanalysis. In “X-ray optics and X-ray microanalysis”. – N.Y.:Acad.Press, 1963. pp. 379-392.

-
54. Павлова Л.А., Белозерова О.Ю., Парадина Л.Ф., Суворова Л.Ф. Рентгеноспектральный электронно-зондовый анализ природных объектов. – Новосибирск: Наука, 2000 г., 224 с.
55. Reed J.B., Ware N.G. Escape peaks and internal fluorescence in X-ray spectra recorded with lithium drifted silicon detectors // J. Phys. E. v.5, pp. 582-583, (1972).
56. Merlet C. Accurate description of surface ionization in electron probe microanalysis: an improved formulation // X-Ray Spectrometry. – 1992. – v.21, N.5. – pp.229-238.
57. Green M., Crosslet V.E. The Efficiency of Production of Characteristic X-radiation in Thick Targets of a Pure Element // Proc. Phys. Soc. London, v. 78 (1961) pp. 1206-1214.
58. Green M. The target absorption correction in x-ray microanalysis. In: X-Ray Optics and X-Ray Microanalysis -N.-Y.:Acad. Press, 1963, pp. 361-377.
59. Финкельштейн А.Л., Гуничева Т.Н., Афонин В.П., Парадина Л.Ф., Пискунова Л.Ф. Расчет спектрального распределения первичного излучения при рентгенофлуоресцентном анализе // Заводская лаборатория. – 1981. – т. 47, № 11. – С. 28-31.
60. Green M., Crosslet V. Measurement of K- L- and M-shell production efficiencies // Brit. J. Appl. Phys. – 1968. – V.1, № 4. – pp. 425-436.
61. Hoefl H., Schwaab P. Investigations towards optimizing EDS analysis by Cliff-Lorimer method in scanning transmission electron microscopy // X-ray spectrometry. – 1988. –v.17, № 5. – pp.201-208.
62. Acosta E., Llovet X. Salvat F. Monte Carlo simulation of bremsstrahlung emission by electrons // Applied physics letters, v.80 N 17, 2002, pp. 3228-3230

-
63. Llovet X. Sorbier L. Campos C.S. Acosta E. Salvat F. Monte Carlo simulation of x-ray spectra generated by kilo-electron-volt electrons // *Journal of applied physics*, v. 93 N.7. pp. 3844-3850. (2003)
64. J.E.Fernandez, V.Scot, E.D.Giulio, F.Salvat. Bremsstrahlung contribution to the X-ray spectrum in coupled photon-electron transport // *X-ray spectrometry*, v.44, 2015, pp. 248-254.
65. V.Scot, J.E.Fernandez. The Monte Carlo code MCSHAPE: main features and recent developments // *Spectrochimica Acta B*, v. 108, 2015, pp. 53-60.
66. Ogawa R., Ochi H., Nishino M., Ichimaru N., Yamato R. Effect of primary filter using theoretical intensity of fluorescent x-rays and scattered x-rays // *X-ray spectrometry*, v. 39, 2010, pp. 399-406.
67. Heckel J., Ryon R.W. Polarized beam x-ray fluorescence analysis // In: *Handbook of x-ray spectrometry*, 2001, pp. 603-630.
68. Kitov B.I. Spectrum function of polarized-scattered x-ray tube radiation // *X-ray spectrometry*, 2005, v. 34, pp. 52-55.
69. Афонин В.П., Лосев Н.Ф., Шалагинов А.И. Об оптимальном варианте заземления электродов рентгеновской трубки при рентгеноспектральном анализе элементов с малыми атомными номерами // *Заводская лаборатория*. – 1968. – т.34, №.2. – С.169-172.
70. Коляда В.М., Зайченко А.К., Дмитриенко Р.В. Рентгеноспектральный анализ с ионным возбуждением. – М.:Атомиздат. 1978, 248 с.
71. Merzbacher E., Lewis H.W. X-ray production by heavy charged particles // in: *Handbuch der physic*, Springer-Verlag, Berlin, 1958, v. 34, pp. 166-192.
72. Kavcic M. Zitnik M. Bucar K. Szlachetko J. Application of wavelength dispersive x-ray spectroscopy to improve detection limits in x-ray analysis. *X-ray spectrometry*, v. 40, 2010, pp. 2-6.

-
73. Folkmann F., Gaarde C., Huus T., Kemp K. Proton-induced x-ray emission as a tool for trace elements analysis // Nuclear instruments and methods, 1974, v. 116, pp. 487-499.
74. Павлинский Г.В. Основы физики рентгеновского излучения, М.:Физматлит, 2007. 240 с.
75. Fernandez J.E., Hubbell J.H., Hanson A.L., Spenser L.V. Polarization effects on multiple scattering gamma transport // Radiation Physics and Chemistry. – 1993. – v. 41, N 4/5. – pp. 579-630.
76. Hirayama H. Lession note on photon interactions and cross sections. KEK, High energy research organization, 2000, 21 p.
77. Stobbe M. Zur Quantenmechanik photoelektrischer Prozesse // Annalen Der Physik – 1930. – v.399, N. 6. – pp.661-715.
78. Nelsen J.A., McMorrow D. Elements of modern X-ray physics. – Wiley, 2001. – 318 p.
79. Финкельштейн А.Л., Фарков П.М. Аппроксимации коэффициентов ослабления рентгеновского излучения в области 0,1-100 кэВ. // Аналитика и контроль. – 2002. – т.6, №4. – С. 377-382.
80. Leroux J. Method for finding mass-absorption coefficients by empirical equation and graphs // Advances in x-ray analysis X-ray analysis. – 1961. – v. 5. – pp. 153-160.
81. Tinh T.P., Leroux J. New basic empirical equation for computing of X-ray mass attenuation coefficients // X-ray spectrometry. – 1979. –v.9, № 2. – pp. 85-91.
82. Heinrich K.F.J. X-ray absorption uncertainty // The electron microprobe. – Wiley, 1966. pp. 131-177.
83. Theisen R., Vollath D. Tabellen der massenschwächungskoeffizienten von rountgenstrahlen verlag stahleisein. – M.B.H Dusseldorf. 1967.

-
84. Маренков О.С. Таблицы и формулы рентгеноспектрального анализа. Методические рекомендации. – Л.:Машиностроение, 1982, Вып. 3. – 101 с.
85. Storm E., Israel H.I. Photon cross-section from 1 keV to 100 MeV for elements $Z=1$ to $Z=100$ // Nucl. Data Tabl. 1970, v. A7, No. 6. pp. 565-681.
86. Маренков О.С., Комков Б.Г., под ред. Комяка Н.И. Таблицы полных массовых коэффициентов ослабления характеристического рентгеновского излучения, ЛНПО Буревестник, 1978, 274 с.
87. Маренков О.С., Комяк Н.И. Фотонные коэффициенты взаимодействия в рентгенорадиометрическом анализе. Л.: Энергоатомиздат, 1988, 224 с.
88. Henke V.L., Gullikson E.M. Davis J.C. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission and reflection at $E=50-30000$ eV, $Z=1-92$ // Atomic Data and nuclear data tables. 1993. V.54 (2), 181-342.
89. Блохин М.А., Швейцер И.Г. Рентгеноспектральный справочник. М.: Наука, 1982, 374 с.
90. Hubbell J.H. Compilation of photon cross sections: some historical remarks and current status // X-ray spectrometry. – 1999. – v.28, N4. – pp. 215-223.
91. Creagh D.C., Hubbell J.H. Problems associated with measurement of X-ray attenuation coefficients. I. Silicon. Report on the international union of crystallography X-ray attenuation project. // Acta Cryst. – 1987. – A43. – pp. 102-112.
92. Creagh D.C., Hubbell J.H. Problems associated with measurement of X-ray attenuation coefficients. II. Carbon. Report on the international union of crystallography X-ray attenuation project. // Acta Cryst. – 1990. – A46. – pp. 402-408.

-
93. Bearden J.A. X-ray wavelengths // *Rev. Mod. Phys.* – 1967. – v.39. – p. 78-124.
94. Bambynek W., Crasemann B., Fink R.W., Freund H.U., Mark H., Swift C.D., Price R.E., Venugopala P. X-ray fluorescence yields, Auger and Coster-Kronig transition probabilities // *Reviews of modern physics.* – 1972. – v.44, no. 4. – pp. 716-813.
95. Beatty R.T. The ionisation of heavy gases by x-rays// *Proc. Roy. Soc. (London).* – 1911. – A85. – pp.230-239.
96. Barkla C.C., Philport A.J. Ionisation in gases and gaseous mixtures by Rountgen and corpuscular (electronic) radiation // *Phil. Mag.* – 1913. – v.25. – pp. 832-856.
97. Auger P. Sur l'effet photoelectrique compose // *J. Phys. Radium.* – 1925. – v.6. – p.205-208.
98. Coster D., Kronig R. de L. New type of Auger effect and its influence on the x-ray spectrum // *Physica.* – 1935. – v. 2. – pp. 13-24.
99. Leisi H.J., Brunner J.H., Perdrisat C.F., Sherrer P. Monoenergetische positronen // *Helv. Phys. Acta.* – 1961. – v. 34. –pp. 161-188.
100. Павлинский Г.В., Китов Б.И., Тюменцев В.Н. Роль рентгеновского излучения высоких энергий в возбуждении L флуоресценции. Аппаратура и методы рентгеновского анализа. Л.: Машиностроение, 1987, вып. 36, с. 49-53.
101. Бахтиаров А.В. Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ в геологии и геохимии. – Л.:Недра, 1985. – 144 с.
102. Thomson J.J. *The Conduction of electricity through gases.* – London:Cambridge University Press, 1906. – 325 p.
103. Комптон А.Х. Алисон С.К. Рентгеновские лучи. Теория и эксперимент. – Л.: Гостехиздат, 1941. – 672 с.

-
104. Блохин М.А. Физика рентгеновских лучей. – М.: Гостехиздат, 1957. – 518 с.
105. Hubbell J.H., Veigele Wm.J., Braggs E.A., Brown R.T., Cromer D.T., Howerton R.J. Atomic Form Factors, Incoherent Scattering Functions, and Photon Scattering Cross Sections // J.Phys. Chem. Ref. Data. – 1975. – v.4, N.3. – pp. 471-538.
106. Brown. R.T. Coherent and incoherent x-ray scattering by bound electrons // Phys. Rev. 1970, A1, pp. 1342-1347, A2 pp. 614-620.
107. Brown R.T. Coherent and incoherent scattering by bound electrons. III. Five-electrons atoms // phys. Rev. 1974. A10, pp. 438-439.
108. Cromer D.T. X-ray scattering factors computed from numerical Hartree-Fock wave functions // Acta crystallogr. 1968, A24, pp.321-324.
109. Hubbell J.H. , McMaster W.H., Del Grande L.K., Mallet J.H. X-ray cross sections and attenuation coefficients. // International tables for X-ray crystallography. Birmingham: Kynoch Press, 1974, V.6. pp. 47-70.
110. Chantler C.T. Theoretical Form Factor, Attenuation and scattering tabulation for Z=1-92 from E=1-10 eV to E=0.4-1.0 MeV // J. Phys. Chem. Ref. Data. 1995. V.24. pp.71-643.
111. Chantler C.T. Detailed tabulation of atomic form factors, photoelectric absorption and scattering cross section, and the mass attenuation coefficients in the vicinity of absorption edges in the soft X-ray (Z=30-36, Z=60-89, E=0.1-10 keV), addressing convergence issues of earlier work// J. Phys. Chem. Ref. Data. 2000. V. 29 (4). pp. 597-1048.
112. Маренков О.С. Дифференциальные коэффициенты рассеяния для рентгенорадиометрического анализа: Методические указания. Л.:ЛНПО Буревестник, 1984, 137 с.
113. Cromer D.T. Weber J.T. Atomic scattering factors for x-rays // international tables for x-ray crystallography. 1974, v.4, pp. 71-147.

-
114. Overbo I. Atomic form factors for large momentum transfers // *Nuove Cimento*, 1977, B40, pp. 330-338.
115. Overbo I. Large-q form factors for light atoms // *Phys. Scr.*, 1978, v.17, pp. 547-548.
116. Hubbell J.H., Overbo I. Relativistic atomic form factors and photon coherent scattering cross-section // *J.Phys. Chem. Ref. Data*. 1979. v.8. No. 1. pp. 69-105.
117. Ивернова В.И. Ревкевич Г.П. Теория рассеяния рентгеновских лучей. М.: Изд. МГУ. 1978. 278 с.
118. Асланов Л.А., Треушников Л.Н. Основы теории дифракции рентгеновских лучей. М.: изд. МГУ, 1983, 288 с.
119. Kissel L., Pratt R.H., Roy S.C. Rayleigh scattering by neutral atomic, 100 eV to 10 MeV // *Phys. Rev.* 1980, A22, pp. 1970-2004.
120. Pratt R.H. Kissel L., Bergstrom P.M. New relativistic S-matrix results for scattering – beyond the usual anomalous factors beyond impulse approximation // *Resonant anomalous X-ray scattering: Theory and applications*. Amsterdam: Elsevier, 1994 pp. 9-33.
121. Kissel L. Toward improved photon-atom scattering predictions // *Nucl. Instrum. Methods*, 1995, B99, pp. 144-147.
122. Rao D.V. Cesareo R. Gigante G.E. Elastic scattering and the associated anomalous dispersion in the energy range $8,63 \leq E \leq 42,75$ keV from heavy atoms // *X-ray spectrometry*, v.27, 1998, pp. 381-389.
123. Singh P., Mehta D., Kumar S., Sharma M., Puri S., Shahi J.S., Singh N. Large angle elastic and inelastic scattering of 14,93 keV photons // *Nuclear instruments and methods B222*, (2004), pp. 1-10.
124. Laue von M. Eine quantitative Prufung der Theorie fur die interferenzerscheinungen bei rountgenstrahlen // *Munchener Sitzungsberichte bayer. Acad. Wiss.* 1912, s. 363-373.

-
125. Bragg W.L. The Diffraction of Short Electromagnetic Waves by a Crystal // Proc. Cambridge Phil. Soc. 17, pp. 43-57. (1913).
126. Bragg W.H., Bragg W.L. The reflection x-rays by crystals. Proc. Roy. Soc. (London) v. A88, 428-438, (1913).
127. Wulf G. Über die kristallorontgenogramme // Physikalische Zeitschrift. 1913. Bd. 14. s. 217-220.
128. Compton A.H. A quantum theory of the scattering of X-rays by light elements // Phys.Rev. Second series.1923. V.21(5). P. 483-502.
129. Klein O. Nishina Y. Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac // Zs. Phys. V.52, pp. 853-869 (1929).
130. Cromer D.T. Mann J.B. Compton scattering factors for spherically symmetric free atoms. // J. Chem. Phys. – 1967. – v.47, N 6. – pp. 1892-1896.
131. Cromer D.T. Compton Scattering factors for aspherical free atoms. // J. Chem. Phys. – 1969. – v. 50, N 11. – pp. 4857-4859.
132. Бахтияров А.В., Пшеничный Г.А. Формулы для приближенного вычисления дифференциальных сечений рассеяния рентгеновского излучения малых энергий. // Аппаратура и методы рентгеновского анализа. – Ленинград:Машиностроение. – 1972. – вып. 11. – С. 200-218.
133. Suric T., Bergstrom P.M., Pisk K. Pratt R.H. Compton scattering of photons by inner –shell electrons// Phys. Rev. Lett. 1991, v.67, pp. 189-192.
134. Suric T. Compton scattering by bound electrons: comparisons of impulse approximation with exact IPA calculations // Nucl. Instr. Meth. 1992, A314, pp. 240-243.
135. Bergstrom P.M. Inelastic scattering by bound electrons at synchrotron radiation energies// Nucl. Instr. Meth. 1993, B79, pp. 240-243.
136. Bergstrom P.M., Pratt R.H. An overview of the theories used in Compton scattering calculations // Radiat. Phys. Chem. 1997, v. 50, p. 3-29.

-
137. Hubbell J.H. An examination of available incoherent scattering S-matrix theory, also Compton profile information, and their impact on photon attenuation coefficient compilations. // NISTIR 6358. – 1999- 18p.
138. Namito Y., Ban S., Hirayama H., Nariyama N., Nakashima H., Nakane Y., Sakamoto Y. et al. Compton scattering of 20 to 40 keV photons // Phys. Rev. – 1995. – A51. – pp. 3036-3043.
139. Kahane S. Relativistic Dirak-Hartree-Fock photon incoherent scattering functions. // At. Data Nucl. Data Tables. – 1998. – v. 68. – pp. 323-347.
140. Yalcin P., Kurucu Y., Sahin Y. Incoherent scattering functions for some elements with $23 \leq Z \leq 81$ // X-ray spectrometry, 2002, v.31, pp. 100-102.
141. Wentzel G. Zur Theorie des Comptoneffects. I. //Z. Physik, 1927. Bd. 43, s. 1-8.
142. Wentzel G. Zur Theorie des Comptoneffects. II. //Z. Physik, 1927. Bd. 43, s. 779-787.
143. Namito Y., Ban S., Hirayama H. Implementation of the Doppler broadening of a Compton scattering photon into EGS4 code. // Nuclear Instr. Meth. – 1994. – A394. – pp. 489-494.
144. G.V.Pavlinsky, A.Yu.Portnoy. The role of Compton scattering in the low-Z elements fluorescence formation // X-ray spectrometry, v.43, 2014, pp. 118-121.
145. J.E.Fernandez, V.Scot, L.Verardi, F.Salvat. Detailed calculation of inner-shell impact ionization to use in photon transport codes // Radiation physics and chemistry, v. 95, 2014, pp. 22-25.
146. Reed W.A. Eisenberger P. Gamma ray Compton profiles of diamond, Silicon and Germanium // Phys. Rev. B. 1972 6, 4596-4604.
147. P.Eisenberger. Electron momentum density of He and H₂; Compton x-ray scattering // Physical review A2, N5, 1970, pp. 1678-1686.

-
148. Sahin Y. Demir D. Compton scattering of 59.54 keV gamma rays from Fe and p-Si samples in an external magnetic field // X-ray spectrometry, v. 32, 2003, pp. 336-338.
149. Simsek O. Ertugrul M. Budak G. Karabulut A. Inelastic and elastic scattering differential cross-section of 59.5 keV photons for Cu and Zn targets. X-ray spectrometry v.33, 2004. pp. 349-353.
150. Schaupp D. Schumacher M, Smend F. Rulhusen P. Hubbell J.H. Small angle reileigh scattering of photons at high energies: Tabulations of relativistic HFS modified atomic form factors // J Phys. Chem. Ref. Data 1983, v. 12, pp. 467-512.
151. H.A.Bethe, L.C.Maximon. Theory of bremsstrahlung and pair production. 1. Differential Cross-section. Phys. Rev, 93, 768-784, (1954).
152. Davies H., Bethe H.A. Maximon L.C. Theory of bremsstrahlung and pair production. 2. Integral Cross-section for pair production. Phys. Rev, 93, 788-795, (1954).
153. I. Øverbø, K.J.Mork, H.A.Olsen. Exact calculation of pair production. // Phys. Rev, v.175, 1978, (1968).
154. Hubbell J.H. Review of photon interaction cross section data in the medical and biological context // Phys. Med. Biol. – 1999. – v. 44. – pp. R1-R22.
155. Pomraning G.C. The equation of radiation hydrodynamics, Pergamon press, Oxford, 1973, 288 p.
156. Fernandez J.E. Rayleigh and Compton scattering contributions to X-ray fluorescence intensity // X-ray spectrometry. – 1992 – v. 21. – pp. 57-68.
157. Dunn W.L., Shultis J.K. Monte Carlo Methods for design and analysis of radiation detectors // Radiation Physics and chemistry, v.78, 2009, pp. 852-858.

-
158. Metropolis M. Ulam S., The Monte Carlo method. // J. Am. Stat. Assoc. 1949 v. 44 (i. 227), pp. 335-341.
159. Metropolis N., 1985, Monte Carlo: in the beginning and some great expectations. In Processing of Joint Los Alamos National laboratory. Lecture Notes in Physics, vol. 240. Springer, New York, pp. 62-70.
160. Salvat F., Fernandez-Varea J.M. Acosta E., Sempau J. The physics of electron/positron transport in Penelope. Proceedings of 9 EGS4 users meeting in Japan, KEK proceedings 2001-22 pp. 1-5.
161. Salvat F., Fernandez J.M., Sempau J. PENELOPE, a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. Universitat de Barcelona, rev. 2003, 241 p.
162. Briesmeister J.F. MCNP – a general Monte-Carlo N-particle transport code, version 4, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, 2000 -724 p.
163. X-ray spectrometry: recent technological advances / edited by Tsuji K., Injuk J., Grieken R.V., – Wiley, 2004. – 599 p.
164. Жуковский А.Н., Мельниченко В.Н., Павлов С.М. Расчет амплитудного распределения для твердых рентгеновских детекторов методом Монте-Карло // Аппаратура и методы рентгеновского анализа. Л.:Машиностроение, 1970, с. 62-66.
165. Gentle J.E., Random number generation and Monte Carlo methods. Second edition. Springer, New York. 2003, 300 p.
166. Shultis J.K. Faw R.E., Radiation Shielding. American Nuclear Society, La Grange Park, IL, 2000.
167. Doster J.M., Gardner R.P. The complete spectral response for EDXRF systems – calculation by Monte Carlo and analysis application // X-ray spectrometry. 1982. V.11. pp. 173-180.
168. He T., Gardner R.P., Verghese K. An improved Si(Li) detector response function // Nucl. Instr. Methods. 1990. V. A299. P. 354-366.

-
169. van Dyck P., Torok S., van Grieken R. Monte Carlo simulation of backscattered peaks in secondary target energy dispersive x-ray spectra // X-ray spectrometry. 1986. V. 15. P. 231-238.
170. Janssens K, Vincze L., van Espen P., Adams F. Monte Carlo simulation of conventional and synchrotron energy-dispersive spectrometers // X-ray spectrometry. 1993. V. 22. P. 234-243.
171. Mantler M., XRF of Inhomogeneous Specimens by Monte-Carlo Techniques // Advances in x-ray analysis X-ray analysis, 1997, v. 41, pp.753-759.
172. Trojek T., Cechak T. Use of MCNP code in energy dispersive x-ray fluorescence // Nuclear instruments and methods B 263 (2007), pp. 72-75.
173. Trojek T., Cechak T. Musilek L. Techniques for depth heterogeneity identification in x-ray fluorescence // Nuclear instruments and methods B 263 (2007), pp. 76-78.
174. Trojek T., Cechak T. Musilek L. Monte Carlo simulation of disturbing effects in quantitative in-situ x-ray fluorescence analysis and microanalysis // Nuclear instruments and methods A 619 (2010), pp. 266-269.
175. Guo W., Gardner R.P., Todd A.C. Using Monte Carlo library Least Squares (MCLLS) approach for in the vivo XRF measurement of lead in bone // Nuclear instruments and methods A 516 (2004) pp. 586-593.
176. Shimizu R., Ikuta T., Murata K. The Monte Carlo technique as applied to fundamentals of EPMA and SEM // J. Appl. phys. 1972. v. 43. N 10. pp. 4233-4249.
177. Joy D.C. Monte Carlo modeling for electron microscopy and microanalysis, Oxford University press, New York, 1995, 216 p.

-
178. Wagner H.W., Werner W.S.M. Calculation of ionization depth distributions and backscattering coefficients applying a new Monte Carlo simulation approach // X-ray spectrometry, v. 27, 1998, pp. 373-380.
179. Chan A. Brown J.D. Modifications to a multiple scattering Monte Carlo model to predict x-ray generation curves // X-ray spectrometry v.26, 1997, pp. 275-278.
180. Osada Y. Monte Carlo calculation using a personal computer for electron probe microanalysis // X-ray spectrometry v.33, 2004, pp. 334-341.
181. Czyzycki M. Wegrzynek D. Wrobel P. Lankosz M. Monte Carlo simulation code for confocal 3D micro-beam X-ray fluorescence analysis of stratified materials // X-ray spectrometry v.40, 2011, pp. 88-95.
182. Афонин В.П., Лебедь В.И. Метод Монте-Карло в рентгеноспектральном анализе. – Новосибирск, Наука, 1989.-100 с.
183. Парадина Л.Ф. Моделирование траектории электрона в трехмерном пространстве методом Монте-Карло. // заводская лаборатория -1987, т. 53. № 2 с. 18-21.
184. Павлова Л.А., Парадина Л.Ф., Афонин В.П. Использование метода Монте-Карло для расчета коэффициентов в способе α коррекции при рентгеноспектральном анализе самородного золота // Зав. лаборатория. 1990, т.56, № 9, с. 37-41.
185. L.Meray, Simulation of X-ray and gamma-ray scatterings in light matrices // J. Radioanalit. Nucl. Chem. Lett. v. 126, pp. 323-334 (1988)
186. L.Meray, E.Hazi. Effect of scattered photons on the intensity of X-ray characteristic lines // Acta Phys. Hung. v. 63, pp. 171-176 (1988).
187. L.Sabbatucci, V.Scott, J.E.Fernandez. Multi-shape pulse pile-up correction: The MCPPU code // Radiation physics and chemistry, v.104, 2014, pp. 372-375.

-
188. Zablotskii A.V., Viryus A.A., Lyamina O.I., Kuzin A.Yu., Kuprianova T.A., Todua P.A., Fillipov M.N. Components of secondary x-ray spectrum in polychromatic excitation and energy-dispersive detection // *Measurement techniques*, v.56, No. 6, pp.625-629.
189. Gavrilenko V.P., Zabolotskii A.V., Korneichuk S.A., Kuzin A.Yu., Kuprianova T.A., Lyamina O.I., Todua P.A., Filippov M.N., Shklover V.Ya. Measurement of structural parameters based on x-ray emission spectra with energy dispersive detection // *Measurement techniques*, v. 59, No. 2, pp. 198-201.
190. Джеймс Р. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М.: ИЛ. 1950. – 572 с.
191. Hart M., Berman L. X-ray optics for synchrotron radiation: perfect crystals, mirrors and multilayers // *Acta Cryst. A*. 1998, V.54 P.850-858.
192. Joensen K.D. Gorenstein P., Hoghoj P., Susini J., Ziegler E., Freund A., Christensen F., Wood J., Gutman G. Broad-band hard X-ray reflectors // *Nuclear instruments and methods B* 132, 1997, pp. 221-227.
193. Kozhevnikov I.V. Analysis of x-ray scattering from a rough multilayer mirror in the first-order perturbation theory // *Nuclear instruments and methods A* 498, 2003, pp. 482-495.
194. Perez R.D., Sanchez H.J., Rubio M. Theoretical model for the calculation of interference effects in TXRF and GEXRF // *X-ray spectrometry*, 2001, v. 30, pp. 292-295.
195. Simabuko S.M., Vazquez C., Boeykens S., Barroso R.C. Total reflection by synchrotron radiation: trace determination in nuclear materials// *X-ray spectrometry*, 2002, v.31, pp. 167-172.
196. M.A.Kumakhov. Capillary optics and their use in x-ray analysis // *X-ray spectrometry*, v. 29, 2000, pp. 343-348.

-
197. Sanchez H.J., Perez R.D. Curvalho M.L. Rubio M. Total reflection x-ray fluorescence analysis using polycapillaries. A comparison with conventional setup // Nuclear instruments and methods B 268 (2010) pp. 3478-3481.
198. Павлинский Г.В. Основы физики рентгеновского излучения (учебное пособие). – Иркутск: РИО ИГУ, 1999. – 165 с.
199. Sherman J. The theoretical derivation of x-ray intensities from mixtures // Spectrochem. Acta, 1955, 7 (5), pp. 283-295.
200. Fernandez J.E. XRF intensity in the frame of the transport theory // X-ray spectrometry. – 1989. – v. 18. – pp.271-279.
201. Fernandez J.E., Molinary V.G. Theoretical estimation of fourth-order xrf intensity // Advances in x-ray analysis. – 1990. – v.33. – p. 573-580.
202. Залесский В.В. К расчету избирательного возбуждения при использовании вторичной рентгеновской флуоресценции // Оптика и спектроскопия, 1964, т.17, № 4, с. 576-582.
203. Павлинский Г.В., Паньков Л.В. Вычислительное моделирование аналитических ситуаций при рентгенофлуоресцентном определении толщины и состава покрытий. // Дефектоскопия, 1993, № 12, с. 72-82.
204. Fano U., Spencer L.V., Berger M.J., Penetration and Diffusion of X-rays // Handbuch der physik, edited by S.Flugge, vol XXXVIII/2, Springer, Berlin, 1960, pp. 660-817.
205. Fernandez J.E., Molinary V.G., Sumini M. Effect of the X-ray scattering anisotropy on the diffusion of photons in the frame of the transport theory // Nucl. Instr. and Meth in Phys. res. – 1989. –A280. – p. 212.
206. Fernandez J.E., Molinary V.G., Sumini M. Correction for the effect of scattering on x-ray intensity // Advances in x-ray analysis. – 1990. – v. 33. p. 553-566.

-
207. Fernandez J.E., Molinary V.G. Teodori F. 3D modeling of unpolarized photon diffusion using the integral form of the transport equation // X-ray spectrometry, v. 28, 1999, pp. 327-334.
208. Fernandez J.E., Bastiano M., Tartari A. Vector Monte Carlo for simulation of polarized photons // X-ray spectrometry, v.27, 1998, pp. 325-331.
209. Величко Ю.И., Махотко В.Ф., Ревенко А.Г. Исследование вкладов эффектов рассеяния рентгеновского излучения в интенсивность рентгеновской флуоресценции // Заводская лаборатория. – 1976. – т.42, № 11. – С. 1338 – 1341.
210. Kis-Varga M., Vegh J. Influence of in-sample scattering of fluorescent radiation on line shapes of Si(Li) detectors in XRF studies. // X-ray spectrometry. – 1993. – v. 22. – pp. 166-171.
211. Fernandez J.E., Sumini M. SHAPE: A computer simulation of energy-dispersive x-ray spectra // X-ray spectrometry. – 1991. – v. 20. – pp. 315-319.
212. Boyle J.F. Isotope-source, energy-dispersive XRF analysis of geological materials using gas-filled proportional counters: signal deconvolution using simulated peak shapes// X-ray spectrometry, v.28, 1999, pp. 178-182.
213. J.E.Fernandez, V.Scot. Deterministic and Monte Carlo codes for multiple scattering photon transport with arbitrary polarization states // Spectrochimica acta B, v.62, 2007, pp. 517-528.
214. Pavlinsky G.V., Dukhanin A.Ju. Calculation of photo- and Auger electron contribution to X-ray excitation of elements with low atomic number // X-Ray Spectrometry. – 1994. – v.23. – pp. 221-228.
215. Pavlinsky G.V., Dukhanin A.Ju. Choose of optimum condition for X-ray excitation of elements with low atomic number // X-Ray Spectrometry. – 1995. – v.24. – pp. 293-297.

-
216. Ревенко А.Г. Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ природных материалов. Новосибирск: Наука, 1994. – 264 с.
217. Coppens P., Cox D., Vlieg E., Robinson I.K. Synchrotron radiation crystallography. Academic Press. 1992. 316 p.
218. Thompson A.C., Vaughan D. (editors), Attwood D.T., Gullikson E.M., Howells M.R., Kortright J.B., Robinson A.L., Underwood J.H., Kim K.-J., Kirz J., Lindau I., Pianetta P., Winick H., Williams G.P., Scofield J.H. X-ray data booklet (second edition), LBNL, University of California Berkeley. 2001, 303 p.
219. Freund A.K. In: Synchrotron radiation in structural biology, N.-Y., London, Plenum press, 1989, pp. 255-259.
220. Vinogradov A.V., Faschenko R.M. An approach to the theory of X-ray multilayers with graded period // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2000. – A448. – pp. 142-146.
221. Jonnard P, Maury H., Andre J.-M. Wavelength dispersive spectroscopy analysis at high spectral resolution: application to the study of Mo/Si multilayers // X-ray spectrometry, v. 36, 2007, pp. 72-75.
222. Andre J.M., Benbalagh R., Barchewitz R., Ravet M.F., Raynal A., Delmotte F., Bridou F., Julie G., Bosseboeuf A., Laval R., Soullie G., Remond C., Fialin M. Soft x-ray multilayer monochromator with improved resolution and low specular background // X-ray spectrometry, v. 30, 2001, pp. 212-215.
223. Habulihaz B., Martins E., Gambelin S., Urch D.S. Chemical effects in soft X-ray spectra even with multilayers: Silicon L spectra using a ‘300 Å’ device // X-ray spectrometry, 1996, v. 25, pp. 15-20.
224. Darwin C.G. X-ray reflection // Philos. Mag. 1914, V.27. pp. 675-690.
225. Darwin C.G. Reflection of x-rays from imperfect crystals // Philos. Mag. 1922. V.43, pp. 800-829.

-
226. Асланов Л.А., Фетисов Г.В., Лактионов А.В., Марков В.Т., Чернышев В.В., Жуков С.Г., Нестеренко А.П., Чуличков А.И., Чуличкова Н.М. Прецизионный рентгendifракционный эксперимент. М.: Изд. МГУ, 1989, 220 с.
227. Ewald P.P. Zur Begründung der kristalloptik. Teil III. Die kristalloptik der rountgenstrahlen. // Ann. Phys. 1917. V. 54, pp. 519-597.
228. Ewald P.P. // Zeitschrift für kristallographie. 1921. Bd. 56. S.148.
229. Tadic T., Jaksic M. Bozicevic I. X-ray tracing study of crystal spectrometers for WDXRS application // X-ray spectrometry, v. 38, 2009, pp. 222-228.
230. Блохин М.А. Методы рентгеноспектральных исследований. – М.: Гос. издат. физ.-мат. литературы., 1959. – 386 с.
231. Soller W. A new precision x-ray spectrometer // Phys. Rev. v. 24, pp. 158-167 (1924).
232. Hámos L. Röntgenspektroskopie und Abbildung mittels gekrümmter Kristallreflektoren // Naturwiss v. 20 № 38, pp. 705-706 (1932)
233. Kcnzl M. V. Sur une nouvelle méthode de focalisation dans la spectrographie des rayons X // C.R. Acad. Sci., v. 201, pp. 656-658 (1935).
234. Johann H.H. Die Erzeugung lichtstarker Röntgenspektren mit Hilfe von Konkavkristallen // Z.f. Physik, v. 69, N 3-4, 185-206, 1931.
235. Johansson T. Über ein neuartiges, genau fokussierendes Röntgenspektrometer Erste Mitteilung // Z.f. Physik, v. 82, pp. 507-528, 1933.
236. Cauchois Y. Tiedema T.J. Burgers W.G. Sur l'emploi de monocristaux d'aluminium dans les techniques de focalisation, en particulier dans la spectrographie X // Acta Cryst. v.3 N5, pp. 372-374, 1950.

-
237. Du Mond J.W.M. A High Resolving Power, Curved Crystal Focusing Spectrometer for Short Wave Length X Rays and Gamma Rays // *Rev. Sci. Instr.*, v.18, N9, 626-638, 1947.
238. Латуш Е.М., Мазурицкий М.И., Солдатов А.В., Markelli A. Светосильный рентгеновский монохроматор со ступенчатой поверхностью // *Приборы и техника эксперимента*, 2002, № 6, с. 97-101.
239. Bingolbali A. MacDonald C.A. Quality assessment system for curved crystal x-ray optics // *Nuclear instruments and methods B267* (2009) pp. 832-841.
240. Друзь В.В. Тезисы доклада 8 совещания по рентгеновской спектроскопии. - «Апатиты», 1966.
241. Лосев Н.Ф. Количественный рентгеноспектральный флуоресцентный анализ. М.: Наука, 1969. – 336 с.
242. Ревенко А.Г., Павлинский Г.В., Лосев Н.Ф., Афонин В.П. О рентгеновском фоне в длинноволновой области спектра // *Зав. лаборатория*. – 1970. т. 36, № 2. – С. 166-169.
243. Афонин В.П., Гуничева Т.Н. Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ горных пород и минералов. – Новосибирск:Наука, 1977. – 256 с.
244. Сухоруков Б.Л., Смагунова А.Н., Павлинский Г.В., Лосев Н.Ф. Исследование состава фона в коротковолновой области рентгеновского спектра флуоресценции // *Журнал аналитической химии*. – 1975. – т.30, № 2. – С. 372-375.
245. Лосев Н.Ф., Смагунова А.Н. Основы рентгеноспектрального флуоресцентного анализа. – М.: Химия, 1982. – 282 с.
246. Павлинский Г.В., Ившев Д.В., Имешкенова Н.Н. Формирование фона в кристалл-дифракционной аппаратуре в длинноволновой области

рентгеновского спектра // Журнал аналитической химии. – 1991. – т.46. – С. 525-532.

247. Гуничева Т.Н., Афонин В.П., Финкельштейн А.Л. Учет фона при анализе на многоканальных рентгенофлуоресцентных спектрометрах. // Журнал аналитической химии. – 1982. – т. 37, №.7. – С. 1157-1162.

248. Arai T. Intensity and distribution of background x-rays in wavelength dispersive spectrometry // X-ray spectrometry. – 1991. – v.20. – pp. 9-22.

249. Andermann G. Kemp J.W. Scattered X-Rays as Internal Standards in X-Ray Emission Spectroscopy // Anal. chem. 1958 v.30, pp. 1306-1309.

250. Clark N.H., Mitchell R.J. Scattered primary radiation as an internal standard in X-ray emission spectrometry: Use in the analysis of copper metallurgical products // X-ray spectrometry, 1973, v.2 pp. 47-55.

251. Markowicz A. A method of correction for absorption matrix effects in samples of 'intermediate' thickness in EDXRF analysis // X-ray spectrometry, 1979. v.8, pp. 14-18.

252. Верховодов П.О. Горбатенко Л.С. // Заводская лаборатория, 1964, т.30, с. 691-694.

253. Бахтиаров А.В., Блохин М.А., Мейер В.А. Исследование фона коротковолнового спектрометра по Кошуа // АМРА, т.19, Машиностроение: Ленинград, 1977, с. 118-133.

254. Verkhovodov P.O. Measurement of background components in wavelength dispersive x-ray fluorescence spectrometry. // X-ray spectrometry, 2006, v.35, pp. 296-304.

255. Е.В.Чупарина, А.Н.Смагунова, Л.А.Елисеева. Исследование процессов образования фона в длинноволновой области рентгеновского спектра. // ЖАХ, т.70, 2015, №8, с. 828-834.

-
256. Афонин В.П., Гуничева Т.Н., Пискунова Л.Ф. Рентгено-флуоресцентный силикатный анализ. – Новосибирск, Наука, 1984. – 225 с.
257. Молчанова Е.И. Диссертация на соискание ученой степени доктора технических наук. Иркутск, 2002.
258. Павлинский Г.В., Имешкенова Н.Н., Ившев Д.В. Расчет соотношения рассеянного пробой первичного и возникшего в ней тормозного излучения фото и Оже электронов // Аппаратура и методы рентгеновского анализа. – 1991. – № 41. – С. 113-119.
259. Дирнли Дж., Нортроп Д. Полупроводниковые счетчики ядерных излучений. М.:Мир, 1966, 260 с.
260. Акимов Ю.К., Игнатъев О.В., Калинин А.И., Кушнирук В.Ф. Полупроводниковые детекторы в экспериментальной физике. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 344 с.
261. Williams E.J., Terroux F.R., Investigation of the passage of fast beta particles through gases // Proc. Roy. Soc., A126, pp. 289-310 (1930).
262. Fulbright H.W. Handbuch der Physik. Bd. 45, Berlin, 1958.
263. Lappe F. Zur Photoleitung aktivierter Kadmiumsulfid-Schichten bei Anregung mit Elektronen // Zs. Physik, v. 154, pp.267-285 (1959).
264. Грязнов Д.В., Лупилов А.В. Исследование характеристик InP детекторов для регистрации гамма излучения // Приборы и техника эксперимента, 2001, № 4. с. 45-48.
265. Fano U. Ionization yield of radiations. Part II. The fluctuations of the number of ions // Phys. Rev. v. 72, pp. 26-29 (1947).
266. Kirkwood D.H.W., Pantecorovo B., Hanna G.C. Fluctuations of ionization and low-energy beta spectrum // Phys. Rev. 74, pp. 497-498, (1948).

-
267. Bohr N. On the decrease of velocity of swiftly moving electrified particles in passing through matter N. // *Phil. Mag.* 30, pp. 581-612, (1915).
268. Ландау Л.Д., О потерях энергии быстрыми частицами на ионизацию // *Journ. Phys. USSR.* v. 8, p. 201, 1944.
269. Blunck O., Leisegang S. Zum Energieverlust schneller Elektronen in dünnen Schichten // *Zs. Physik* v. 128, pp. 500-505, (1950).
270. Brugemann L., Gerndt E.K.E. Detectors for x-ray diffraction and scattering: a users overview // *Nuclear instruments and methods A* v.531. (2004) 292-301.
271. Мамиконян С.В. Аппаратура и методы флуоресцентного рентгенорадиометрического анализа. – М.: Атомиздат, 1976. – 280 с.
- 272 Wilhelm H.E. Recombination in Columns // *J. Chem. Phys.* v. 47, pp. 4356-4365 (1967)
273. Романихин В.П., Швецов А.М., Рекомбинационные потери заряда при регистрации быстрых нейтронов пропорциональными газовыми счетчиками // *Приборы и техника эксперимента*, 2002, № 5, с. 25-31.
274. Hendricks R.W. Space charge effects in proportional counters // *Rev. Scient. Instrum.* – 1969. – v.40, N 9. – p. 1216-1223.
275. Скородумов Д.В., Уланов М.В. Послеимпульсы в пропорциональном счетчике с катодами из разных материалов // *Приборы и техника эксперимента.* – 2000. – № 2. – с. 33-37.
276. Ерин С.В. Влияние гасящих добавок и материала катода на работу пропорциональных трубок // *Приборы и техника эксперимента.* – 1998. – №2. – с.26-30.
277. Гоганов Д.А., Лозинский Б.С., Сиухин А.Г. О работе проточного пропорционального счетчика мягкого рентгеновского излучения // *Аппаратура и методы рентгеновского анализа.* – Л.:Машиностроение. – 1967. – № 2. – С. 111.

-
278. Алексеев Г.Д., Круглов В.В., Хазинс Д.М. Самогасящийся стримерный (СГС) разряд в проволочной камере // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 1982. Т.13. с. 703-748.
279. Кузьминов В.В., Янц В.Э. Пропорциональный счетчик из кварцевого стекла для регистрации внешнего рентгеновского излучения. Приборы и техника эксперимента, № 3, 1997, с. 146-147.
280. Кузьминов В.В., Лиховид Н.А., Новиков В.М. Миниатюрный пропорциональный счетчик с корпусом из кварцевого стекла. Приборы и техника эксперимента, № 4, 1990, с. 86-87.
281. Прайс В. Регистрация ядерного излучения, ИЛ, 1960, 466 с.
282. Медведев М.Н. Сцинтилляционные детекторы. – М.: Атомиздат, 1977. – 136 с.
283. Meyer A., Murray R.B., Scintillation response of activated inorganic crystals to various charged particles // Phys. Rev. 122, pp. 815-826 (1961).
284. Engelkemeir D. Nonlinear Response of NaI(Tl) to Photons// Rev. Sci. Instr. v. 27, pp. 589-591, (1956).
285. Iredale P. The effect of the non-proportional response of NaI(Tl) crystals to electrons upon the resolution for γ -rays Nucl. Instr. Meth. v. 11, pp. 340-346, (1961).
286. Clarke H.B., Northrop D.C., Simpson O. The Scintillation Phenomenon in Anthracene I. Radiation Damage // Proc. Phys. Soc., v. 79, pp. 366-372 (1962).
287. Birks J.B. Energy transfer in organic phosphors // Phys. Rev. 94, pp. 1567-1573, (1957).
288. Brooks F.D. A scintillation counter with neutron and gamma-ray discriminators// Nucl. Instr. Meth. v. 4, 151-163, (1959).
289. Owen R.B. Pulse Shape Discrimination - A Survey of Current Techniques // IRE Trans. Nucl. Sci. v. NS-9, No 3. pp. 285-293 (1962).

-
290. Хрячков В.А., Дунаев М.В., Кетлеров В.В., Семенова Н.Н., Тараско М.З. Новый метод разделения заряженных частиц с использованием кристаллов CsI(Tl) // Приборы и техника эксперимента, 2000, № 3, с. 29-37.
291. М.В.Прокуронов, А.Н.Шабалин. Цифровая идентификация нейтронов и гамма квантов по форме импульса при высокой загрузке детектора и низкой энергии регистрируемого излучения. Приборы и техника эксперимента, 2007, № 3. с. 31-45.
292. А.В.Вересникова, И.Р.Барабанов, Б.К.Лубсандоржиев, Р.В.Полещук, Б.А.М.Шайбонов, Е.Э.Вятчин, В.Н.Карноухов. Исследование кинетики сцинтилляционного свечения кристалла CaMoO₄. Приборы и техника эксперимента, 2009, №1, с. 41-45.
293. Gibbons P.E. Nortrop D.C. Simpson O. The Scintillation Phenomenon in Anthracene I. Radiation Damage // Proc. Phys. Soc. 79, pp. 366-372, (1962).
294. Аверкиев В.В., Ляпидевский В.К., Салахутдинов Г.Х. Спектрометрические характеристики детекторов из германата висмута в области энергий рентгеновских и гамма квантов от 4,5 до 662 кэВ. Приборы и техника эксперимента, № 4, 1990, с. 80-83.
295. Катаев А.А. Поиск путей создания фотоэлектронных умножителей со сверхнизким уровнем собственных шумов // Приборы и техника эксперимента. – 1989. – № 3. – С. 147-153.
296. Июдин А.Ф., Богомолов В.В., Свертилов С.И., Яшин И.В., Классен Н.В. Особенности собственного фона в сцинтилляционных кристаллах LaBr₃:Ce и CeBr₃. Приборы и техника эксперимента, 2009, №6, с. 16-24.
297. Больбит Н.М., Тарабан В.Б., Шелухов И.П., Клишпот Э.Р., Милинчук В.К. Пластмассовый сцинтиллятор нового типа с превосходной радиационной стойкостью // Приборы и техника эксперимента. – 2000. – № 4. – с.31-35.

-
298. Васильченко В.Г., Жмурова З.И., Кривандина Е.А., Соболев Б.П., Derenzo S.E., Moses W.W., West A.C. Новые оптические многокомпонентные монокристаллические материалы на основе фторидов тяжелых металлов // Приборы и техника эксперимента. – 2000. – № 1. – с. 53-59.
299. Бритвич Г.И., Васильченко В.Г., Лапшин В.Г., Соловьев А.С. Новые тяжелые пластмассовые сцинтилляторы // Приборы и техника эксперимента. – 2000. – № 1. – с. 42-45.
300. Бритвич Г.И., Васильченко В.Г., Кириченко В.Н., Купцов С.И., Лапшин В.Г., Солдатов А.П., Соловьев А.С., Рыкалин В.И., Черниченко С.К., Шеин И.В. Новые сцинтилляторы на полистирольной основе // Приборы и техника эксперимента, 2002, № 5, с. 66-77.
301. Гурский И.Е., Кафтанов В.С., и др. Исследование свойств сцинтилляционных кристаллов CeF_3 // Приборы и техника эксперимента. – 2000. – № 1. – С. 36-41.
302. Steenstrup S. Gerward L. Hansen K.K. Jensen S.K. Correction for escape in x-ray spectra measured by NaI scintillation counters. X-ray spectrometry, v. 29, 2000, pp. 249-252.
303. Башкиров Н.И. Зависимость формы световой вспышки сцинтилляторов NaI(Tl) от температуры // Приборы и техника эксперимента, № 2, 1989, с. 72-75.
304. Santos J.M.F. Lopes J.A.M. Veloso J.F.C.A, Simoes P.C.P.S. Dias T.H.V.T. Santos F.P. Rachinhas P.J.B.M. Ferreira L.F.R. Conde C.A.N. Development of portable gas proportional scintillation counters for x-ray spectrometry // X-ray spectrometry, v. 30, 2001, pp. 373-381.
305. Акимов Ю.К., Калинин А.И., Кушнирук В.Ф. Юнгклауссен Х. Полупроводниковые детекторы ядерных частиц и их применение. М., Атомиздат, 1967. – 255 с.

-
306. Ю.К.Акимов Кремниевые детекторы излучений (обзор) Приборы и техника эксперимента, 2007, № 1 с. 5-34.
307. Rion R.W. The transistor and energy-dispersive x-ray spectrometry: roots and milestones in x-ray analysis (account). X-ray spectrometry, v.30, 2001. pp. 361-372.
308. Смит Р. Полупроводники, М.:ИЛ, 1962. – 373 с.
309. Бонч-Бруевич В.Л., Калашников С.Г. Физика полупроводников. М.:Наука, 1977, 679 с.
310. Милнс А. Примеси с глубокими уровнями в полупроводниках. М.Мир, 1977, 562 с.
311. Аскеров Б.М. Кинетические эффекты в полупроводниках Л:Наука, 1970, 303 с.
312. Ансельм А.И. Введение в теорию полупроводников. М.Наука, 1978, 615 с.
313. Shokley W. Problems related top-*n* junctions in silicon // Czech. Journ. Phys. v. 11, pp. 81-121, (1961).
314. Зи С.М. Физика полупроводниковых приборов. М.: Энергия, 1973, 656 с.
315. Hall R.N. Recombination processes in semiconductors. // Proc. IEEE, v. 106 B, pp. 923-931 (1959).
316. Shockley W., Read W.T. Statistic of the recombination of holes and electrons. // Phys. Rev. v. 87, pp. 835-842, (1952).
317. Wertheim G.K. Transient recombination of excess carriers in semiconductors. // Phys. Rev. v. 109, pp. 1086-1091 (1958)
318. Lax M. Giant Traps. // Journ. Phys. Chem. Solids, v. 8, pp. 66-73, (1959)
319. Балдин С.А., Вартанов Н.А., Ерыхайлов Ю.В., Иоаннесянц Л.М., Матвеев В.В., Сельдяков Ю.П. Прикладная спектрометрия с полупроводниковыми детекторами. М.: Атомиздат, 1974. 320 с.

-
320. Даргис А.Ю. Измерение дрейфовой скорости в твердых телах. Институт физики полупроводников АН Лит. ССР. Вильнюс: Мокслаб 1987, - 204 с.
321. Gibson W.M. Miller G.L. Charge collection in semiconductor particle detectors. Brookhaven National Laboratory report, No BNL 5391. 35 p.
322. Бойко М.Е., Еремин В.К., Иванов А.М., Строкан Н.Б., Голубков С.А., Егоров Н.Н., Конков К.А., Сидоров А.И. Устойчивость кремниевых планарных детекторов к рентгеновскому излучению // Приборы и техника эксперимента, 2000, № 3, с. 111-115.
323. Sakai E. // IEEE Trans. Nucl. Sci., 1971, v. NS-18, No. 1, p.208.
324. Norman T.L., Campbell J.L. Determination of the solid angle of an Si(Li) detector // X-ray spectrometry v. 31 2002, pp. 345-352.
325. Northrop D.C. Simpson O. Semiconductor Counters: I. Theory // Proc. Phys. Soc., v. 80, pp. 262-275 (1962).
326. Musket R.G. Bauer W. Determination of gold-layer and dead layer thickness for Si(Li) detector // Nuclear instruments and methods v. 109, 1973, pp. 593-595.
327. Eisberg R., Makino M., Cole R., Waddell C.N., Baker M., Jarmer J.J., Lee D.M., Thompson P. , Design and performance of an 8 cm thick intrinsic germanium detector telescope // Nuclear instruments and methods 1977, v.146, p. 487-495.
328. Гуров Ю.Б., Исаков И.В., Карпухин В.С., Лапушкин С.В., Сандуговский В.Г., Чернышев Б.А. Измерение толщины нечувствительных слоев полупроводниковых детекторов // Приборы и техника эксперимента 2008 № 1, с. 67-71.
329. Cohen D.D., Stelcer E., Siegele R., Ionescu M. Silicon detector dead layer thickness estimates using proton bremsstrahlung from low atomic

number targets. // XI International Conference on PIXE and its Analytical Applications, Puebla, Mexico, 2007, pp. B3-1-B3-4.

330. Scholze F. Procop M. Measurement of detection efficiency and response function for an Si(Li) x-ray spectrometer in the range 0,1-5 keV // X-ray spectrometry, v.30, 2001, pp. 69-76.

331. Ильясов А.З., Мазитов Б.С., Приборы и техника эксперимента 1974, № 2 с.60.

332. Азимов С.А., Муминов Р.А., Шамарзаев С.Х., Яфасов А.Я. Кремний-литиевые детекторы ядерных излучений. Ташкент, ФАН, 1981, с. 61.

333. Гуров Ю.Б., Катулина С.Л., Сандуковский В.Г., Юрковски Я. Телескопические кремниевые детекторы // Приборы и техника эксперимента 2005, № 6 с.2-12.

334. Вылов Ц., Осипенко Б.П., Сандуковский В.Г. и др. Сообщение ОИЯИ 13-85-677, Дубна, 1985.

335. Гуров Ю.Б., Гусев К.Н., Катулина С.Л., Митура-Новак М., Райхель Б., Сандуковский В.Г., Юрковски Я. Имплантированные HPGe-детекторы для многослойных спектрометров заряженных частиц // Приборы и техника эксперимента, 2004, №5, с. 34-37.

336. Горнов М.Г., Гуров Ю.Б., Бер М.Н., Морохов П.В., Сандуковский В.Г., Телькушев М.В. Выбор формирующих цепей многослойного полупроводникового спектрометра заряженных частиц // Приборы и техника эксперимента, 2002, № 5. с. 45-50.

337. Cohen D.D., Stelcer E. Siegele R. Ionescu M. Silicon detector dead layer thickness estimates using proton bremsstrahlung from low atomic number targets // X-ray spectrometry, v. 37, 2008, pp. 125-128.

-
338. Rossington C.S., Walton J.T. Jaklevic J.M. Si(Li) detectors with thin dead layers for low energy x-ray detection. Lawrence Berkley laboratory report LBL-29061, 1990.
339. Cox C.E. Fischer D.A., Schwarz W.G., Song Y. Improvement in the low energy collection efficiency of Si(Li) x-ray detectors // Nuclear instruments and methods B v. 241 (2005) pp. 436-440.
340. Improvements in or relating to a radiation detector comprising a semiconductor device. Patent GB1278444, 1972.
341. Жуковский А.Н., Пшеничный Г.А., Мейер А.В. Высокочувствительный рентгенофлуоресцентный анализ с полупроводниковыми детекторами. – М.: Энергоатомиздат, 1991 – 160 с.
342. Раджапов А.С. Универсальный спектрометр на основе Si(Li) p-i-n структуры с большим объемом // Приборы и техника эксперимента, 2007, № 4, с. 29-31.
343. Муминов Р.А., Раджапов С.А., Сагындыков Н.А., Нурбаев К.М. Особенности изготовления Si(Li)-детекторов с большим объемом рабочей области // Атом. энергия, т. 98, 2007, с. 76-78.
344. Раджапов С.А. Сб. научных трудов международной конференции, посвященной 90-летию академика С.А.Азимова. Фундаментальные и прикладные вопросы физики, 2004 г., Ташкент, с.331-334.
345. Castoldi A., Fiorini C. Guazzoni C. Longoni A. Struder L. Semiconductor Drift detectors: Applications and new devices // X-ray spectrometry v.28 1999, pp. 312-316.
346. Eggert T. Boslau O. Goldstrass P. Kemmer J. Silicon drift detectors with enlarged sensitive areas // X-ray spectrometry v.33, 2004, pp. 246-252.
347. Sokolov A. Loupilov A. Gostilo V. Semiconductor peltier-cooled detectors for x-ray fluorescence analysis // X-ray spectrometry v.33, 2004, pp. 462-465.

-
348. Ван дер Зил А. Флуктуации в радиотехнике и физике, М.,Л. : Госэнергоиздат, 1958, 320 с.
349. Джиллеспи А.Б. Сигнал, шум и разрешающая способность усилителей. М.: Атомиздат, 1964, 205 с.
350. Гоноровский И.С. Радиотехнические цепи и сигналы, М.: Советское радио, 1967, 327 с.
351. Arecchi F.T., Cavalleri G., Gatti E. Signal to noise ratio and resolving time in pulse amplifiers for nuclear detectors // *Energia Nucleare*. – 1960. – v.7. – pp. 691-698.
352. Bertolaccini M., Bussolati C., Cova S. Semiconductor nuclear particle detectors and circuits: Proceedings of a conference conducted by subcommittee on instruments and technique committee on nuclear science; publication 1593; National Academy of science. Washington D.C. 1969. pp. 523-525.
353. Papp T. On the response of solid state detectors, based on energetic electron transport processes // *X-ray spectrometry*.- 2003. –v.32. – pp.458-469.
354. Simoes P.C.P.S., J.M.F. dos Santos, Conde C.A.N. Driftless gas proportional scintillation counter pulse analysis using digital processing techniques // *X-ray spectrometry*. – 2001. –v.30, N 5. – pp. 342-347.
355. Papp T., Lakatos T., Nejedly Z., Campbell J.L. Improvement in limit of detection in particle induced x-ray emission by means of rise time and pulse shape discrimination // *Nuclear instrument and methods B* 189, 2002, pp. 66-71.
356. Papp T. Maxwell J.A. Papp A., Nejedly Z., Campbell J.L. On the role of the signal processing electronics in x-ray analytical measurements // *Nuclear instruments and methods B* v.219-220 (2004) pp. 503-507.

-
357. Басиладзе С.Г. Быстродействующая ядерная электроника. – М.: Энергоиздат, 1982. – 160 с.
358. Мелешко Е.А. Быстродействующие цифровые регистраторы формы сигнала // Приборы и техника эксперимента. – 1997. – № 1. – С. 5-26.
359. Keith H.D., Loomis T.C. Calibration and use of a lithium drifted silicon detector for accurate analysis of X-ray spectra // X-ray spectrometry. – 1976. – v.5. – pp. 93-103.
360. Campbell J.L., Millman B.M., Maxwell J.A. Perujo A., Teesdale W.J. Analytic fitting of monoenergetic peaks from Si(Li) X-ray spectrometers // Nuclear instruments and methods B v.9, 1985, pp. 71-79.
361. Krumrey M., Tegeler E., Ulm G. Complete characterization of a Si(Li) detector in the photon energy range 0,9-5 keV // Rev. Sci. instrum. 60(7), 1989, pp. 2287-2290.
362. Campbell J.L., McDonald L., Hopman T., Papp T. Simulations of Si(Li) x-ray detector response // X-ray spectrometry. – 2001. – v.30, N 4. – pp. 230-241.
363. Lepy M.-C., Plagnard J., Stemmler P., Ban G., Beck L., Dhez P. Si(Li) detector efficiency and peak shape calculation in the low-energy range using synchrotron radiation // X-ray spectrometry, v.26, 1997, pp. 195-202.
364. Papp T., Campbell J.L. Size and origin of the escape peak in various Si(Li) detectors // X-ray spectrometry. – 2001. – v. 30, N2. – pp. 77-82.
365. Lowe B.G. An analytical description of low-energy X-ray spectra in Si(Li) and HPGe detectors // Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. – 2000. – A439. – pp. 247-261.
366. Fioratty M.P., Piermattey S.R. Calculation of the escape peak for GeLi and NaI radiation detectors // Nucl. Instr. Meth. 1971, v. 96 (4), pp. 605-608.
367. Dyson N.A. The escape peak in Si(Li) planar detectors // Nucl. Instr. Meth. 1974, v. 114 (1), pp. 131-133.

-
368. Christensen L.H. Comparison between experimental and calculated relative escape peak intensities for an intrinsic Ge detector in the energy region 11–25 keV // *X-ray spectrometry*, 1979, v. 8, pp. 146-148.
369. Can C., Bilgici S.Z. An investigation of x-ray escape for an HPGe detector // *X-ray spectrometry* v.32, 2003, pp. 276-279.
370. Жуковский А.Н., Плотников В.И., Гоганов Д.А. Применение ППД в рентгеновской спектрометрии // *Аппаратура и методы рентгеновского анализа*. Л.:Машиностроение, 1969, вып. 4, С. 227-240.
371. Scofield J.H. Theoretical photoionization cross sections from 1 to 1500 keV. Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51326, 1973, 376 p.
372. Iskef H., Cunningham J.W., Watt D.E. Projected ranges and effective stopping powers of electrons with energy between 20 eV and 10 keV // *Phys. Med. Biol.* – 1983. – v. 28. p. 535-546.
373. Пшеничный Г.А., Жуковский А.Н., Мейер А.В. Высокочувствительный рентгенофлуоресцентный анализ на базе полупроводниковых спектрометров. Л.: Изд. ЛГУ, 1986, 73 с.
374. Can C. Escape of photoelectrons and Compton-scattered photons from an HPGe detector // *X-ray spectrometry*, v. 32, 2003, pp. 280-284.
375. Pekoz R., Can C. Components of detector response function: Monte Carlo simulations and experiment // *X-Ray Spectrometry*. 2006. v. 35, pp. 347-351.
376. Felsteiner J., Kahane S., Rosner B. Effect of the electron momentum distribution on the shape of the Compton edge of Si(Li) detectors // *Nuclear Instruments Methods*. v. 118 (1973) pp. 253-255.
377. Papp T., Campbell J.L., Raman S., 1998. Fluorescence and Coster Kronig yields of the L1 shell in gadolinium // *Phys. Rev. A*. v. 58, pp. 3537-3543.

-
378. B.Cross, G.Bale, B.Lowe, R.Sareen. Monte Carlo modeling of silicon x-ray detectors. Denver X-ray conference, 2005.
379. Meara J.M., Campbell J.L. Corrections to the conventional approach to Si(Li) detector efficiency // X-ray spectrometry v.33, 2004, pp. 146-157.
380. Fernandez L.P.M. Lopes J.A.M. dos Santos J.F.M., Conde C.A.N. X-ray spectrometry with peltier-cooled large area avalanche photodiodes // Nuclear instruments and methods B v.213 (2004) pp. 267-271.
381. Гусеев К.Н., Гуров Ю.Б., Катулина С.Л., Павлов В.Н., Сандуковский В.Г. Исследование характеристик полупроводниковых детекторов из кремния и германия при температурах ниже 77 К // Приборы и техника эксперимента, 2007, № 2, с. 65-69.
382. Scholze F. Procop M. Detection efficiency of energy-dispersive detectors with low-energy windows // X-ray spectrometry v.34, 2005, pp. 473-476.
383. Scholze F., Procop M. Modeling the response function of energy dispersive x-ray spectrometers with silicon detectors // X-Ray Spectrometry 2009. v.38, pp. 312-321.
384. Procop M. Estimation of absorbing layer thickness for an Si(Li) detector // X-ray spectrometry, v.28, 1999. pp. 33-40.
385. Campbell J.L., Maxwell J.A., Papp T. White G. Si(Li) detector lineshapes: contributions from atomic physics and detector properties // X-ray spectrometry, v.26, 1997, pp. 223-231.
386. Plagnard J. Bobin C. Lepy M. Accurate efficiency calibration of low energy HPGe detector using a monochromatic x-ray source. // X-ray spectrometry, v.36 2007, pp. 191-198.
387. Грязнов Д.В., Лупилов А.В. Блок детектирования рентгеновского излучения на основе GaAs детектора // Приборы и техника эксперимента, 2000, №6, с. 97-99.

-
388. Vincze U.L., Janssens K., Vekemans B., Adams F. Monte Carlo simulation of x ray fluorescence spectra: part 4. Photon scattering at high x-ray energies // *Spectrochimica Acta Part B* 54, 1999, pp. 1711-1722.
389. Barross S.F., Maidana N.L., Fernandez-Varea J.M., Vanin V.R. Full-energy peak efficiency of Si drift and Si(Li) detectors for photons with energies above Si K binding energy // *X-ray spectrometry*, v.46, 2017, pp. 34-43.
390. Boson J., Agren G., Johansson L. A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations // *Nuclear Instruments and Methods, A*, v. 587, 2008, pp. 304-314.
391. Cabal F.P., Lopez-Pino N., Bernal-Castillo J.L., Martinez-Palenzuela Y., Aguilar-Mena J., D.Alessandro K., Arbelo Y., Coralles Y., Diaz O. Monte Carlo based geometrical model for efficiency calculation of an n-type HPGe detector // *Applied Radiation and Isotopes*, v.68, 2010, pp. 2403-2408.
392. Haj-Heidari M.T., Safari M.J., Afarideh H., Rouhi H. Method for developing HPGe detector model in Monte Carlo simulation codes // *Radiation Measurements*, v. 88, 2016, pp. 1-6.
393. Chham E., Pinero Garcia F., El Bardouni T., Angeles Ferro-Garcia, Azahra M., Benaalilou K, Krikiz M., El Bakkali J., Kaddour M. Monte Carlo analysis of the influence of germanium dead layer thickness on the HPGe gamma detector experimental efficiency measured by use of extended sources // *Applied radiation and Isotopes*, v.95, 2015, pp. 30-35.
394. Brualla L., Maidana N.L., Vanin V.R. Determination of the detection efficiency of a planar HPGe detector with non-uniform frontal dead layer // *X-ray spectrometry*, v. 44, 2015, pp. 89-92.
395. Tomal A., Santos J.C., Costa P.R., Lopez Gonzales A.H., Poletti M.E. Monte Carlo simulation of the response functions of CdTe detectors to be

applied in X-ray spectroscopy // *Applied Radiation and Isotopes*, v. 100, 2015, pp 32-37.

396. Вартанов Н.А., Самойлов П.С. Прикладная сцинтилляционная гамма спектрометрия. М., Атомиздат, 1969. – 463 с.

397. Hill M.W. An anticoincidence-shielded Ge(Li) gamma-ray spectrometer // *Nuclear instruments and methods*, 1965, v.36, No. 2 pp. 350-352.

398. Perkins R.W. Nielsen J.M., Diebel R.N. Total Absorption Gamma Ray Spectrometers Utilizing Anticoincidence Shielding // *Rev. Sci. Instr.* 1960, v.31, no 12, pp. 1344-1349.

399. Cooper J.A., Runcitelli L.A., Perkins R.W. An anticoincidence-shielded Ge(Li) gamma-ray spectrometer and its application to radioanalytical chemistry problems// *J. Radioanal. Chem.* 1970, v.6, no. 1, pp. 147-163.

400. Lewis S.R., Shafrir N.H., Low level Ge(Li) gamma-ray spectrometry in marine radioactivity studies // *Nuclear instruments and methods*, 1971, v. 93, No 2, pp. 317-332.

401. Кондратьев В.В., Соколов А.Д., Benoist A., Gatot-Garbe A., Lubczynsky P. Гамма спектрометр на основе сегментированного детектора из особо чистого германия с подавлением фона // *Приборы и техника эксперимента*. 2002. №4, С.130-134.

402. Composite solid state radiation detector. UK patent 1233607, 1968

403. Michaelis W., Kupfer H. A high-resolution Ge(Li) anti-compton spectrometer for radiative neutron capture spectroscopy // *Nuclear instruments and methods*, 1967, v. 56, No 1, pp. 181-188.

404. Cooper J.A., Perkins R.W. A versatile Ge(Li)-NaI(Tl) coincidence-anticoincidence gamma-ray spectrometer for environmental and biological problems // *Nuclear instruments and methods* 1972, v.99, No. 1, pp.125-146.

-
405. Hick H., Rumpold K., Weinzierl P. A high resolution Compton-spectrometer using a semi-conductor detector // Nuclear instruments and methods 1963, v.24, No. 3, pp. 327-328.
406. Beech A. McG. Parry J.K., Urquhart D.F. A two crystal coincidence gamma ray spectrometer using a solid state detector // Nuclear instruments and methods 1964, v. 27, No 1, p. 169-171.
407. Semiconductor radiation detector. Patent JP63145985, 1988.
408. Pair of semiconductor radiation detectors having different atomic numbers and sensitive regions of different thickness. Patent UK3291992, 1966.
409. Luukko A., Holmberg P. Coincident summing effects in Ge(Li)-detectors // Nuclear instruments and methods, 1968, v.65, No. 1, pp. 121-122.
410. Kantele J., Suominen P. A Ge(Li)-Ge(Li) sum-peak (summing coincidence) spectrometer // Nuclear instruments and methods, 1970, v. 86, No. 1, pp. 65-76.
411. Giesler G.C., Kosanke K.L., Warner R.A., McHarris Wm.C., Kelly W.H. Ge(Li)-Ge(Li) sum coincidence: A bonus from Ge(Li)-Ge(Li) megachannel coincidence experiments // Nuclear instruments and methods , 1971, v. 93, No. 2, pp. 211-220.
412. Forest H. Etude d'un spectrometre a somme et coincidence a detection hybride // Nuclear instruments and methods, 1971, v. 97, No. 1, pp.113-121.
413. Арсаев М.И., Кладов А.В. Фосвич-детектор для спектрометрии бета-излучения // Приборы и техника эксперимента 2007 № 1 с. 108-111.
414. Кладов А.В. Фон фосвич-детектора типа “dE+E” // Приборы и техника эксперимента, 2008, №6, с.16-18.
415. Минеев Ю.В. Новые применения дельта E-E методики для идентификации частиц в дозиметрии. // Приборы и техника эксперимента, 1998, № 6., с. 59-64.

-
416. Semiconductor radiation detector. Patent JP63156368, 1988.
417. Odaka H. Sugimoto S. Ishikawa S. Katsuta J. Koseki Y. Fukuyama T. Saito S. Sato R., Sato J., Watanabe S. Kokubun M., Takahashi T. Takeda D. Fukazawa Y. Tanaka T. Tajima H. Development of an integrated response generator for Si/CdTe semiconductor Compton cameras. // Nuclear instruments and methods. A624. 2010, pp. 303-309.
418. Ананенко А.А., Андриющенко Л.А., Выдай Ю.Т., Горденко Л.С., Горбачева Т.Е., Гринев Б.В., Тарасов В.А., Шляхтуров В.В. Применение сцинтиллятора на основе кристалла паратерфенила в составе комбинированного детектора // Приборы и техника эксперимента 2008 №6, с. 19-22.
419. Браницкий А.В., Олейник Г.М. Восстановление параметров спектра мягкого рентгеновского излучения по сигналам вакуумных рентгеновских диодов // Приборы и техника эксперимента, 2000, № 4, с. 58-64.
420. Рыжиков В.Д., Сохин В.П., Даншин Е.А. Твердотельный комбинированный детектор для радиометрии // Приборы и техника эксперимента, № 6., 1990, с. 67-69.
421. Sauli F. GEM: A new concept for electron amplification in gas detectors // Nuclear instruments and methods A, 1997, v. 386 p. 531-534.
422. Бузулуцков А.Ф. Детекторы излучений на основе газовых электронных умножителей (обзор) // Приборы и техника эксперимента, 2007, № 3, с. 5-30.
423. Волков В.П., Глуховский Б.М., Селиванчик Н.М., Ярошенко И.Ф. Фотоэлектронный умножитель на микроканальных пластинах с матричным анодом // Приборы и техника эксперимента, № 6, 1990, с. 133-137.

424. Долбня И.П., Князев Б.А., Симонов В.П., Фельдман Г.Г. Исследование абсолютной чувствительности электронно-оптического преобразователя в диапазоне 7-20 кэВ // Приборы и техника эксперимента, № 4, 1990, с. 208-210.

425. Волков Г.С., Зайцев В.И., Лангли С., Мишенский В.О., Папазьян Ю.В., Федулов М.В., Смирнов В.П., Этлишер Б. Спектрограф мягкого рентгеновского излучения с регистрацией на ПЗС // Приборы и техника эксперимента, 1997, № 1, с. 125-130.

426. Гришкин Ю.Л., Поздняков А.С., Кирсанов М.А., Трофимов В.П. Микростриповые газовые камеры на сапфировых подложках с алюминиевыми стрипами и IAD покрытием // Приборы и техника эксперимента, 1997, № 1, с. 58-61.

427. Амаглобели Н.С., Багатурия Ю.Ш., Буров Р.В., Глonti Л.Н., Саканделидзе Р.М., Сахелашвили Т.М., Чиладзе Б.Г. Большие многопроволочные пропорциональные камеры // Приборы и техника эксперимента, 1989, № 3, с. 61-64.

428. Белозеров А.В., Коржук Ю.А., Певчев Ю.В., Ситников С.И. Многопроволочные пропорциональные камеры низкого давления для регистрации осколков деления // Приборы и техника эксперимента, № 3, 1989, с. 65-71.

429. Borkovsky J.C., Kopp M. New type of position-sensitive detectors of ionizing radiation using rise-time measurements // Rev. Sci. instrum. 1968, v. 39, pp. 1515-1522.

430. Gabriel A., Dupont Y. A position sensitive proportional detector for x-ray crystallography // Rev. Sci. instr. 1972, v. 43, pp. 1600-1602.

431. Гоганов Д.А., Гутов А.Л., Калинин В.Е., Лебедев А.Г., Серебряков А.С. Характеристики позиционно-чувствительных детекторов с

резистивным анодом // Детекторы рентгеновского излучения. Сборник научных трудов ВНИИЭП. Л.: ВНИИЭП, 1989.

432. Пешехонов В.Д. Позиционно-чувствительный детектор дуговой формы с полосковым анодом // Приборы и техника эксперимента, №5, 1990, с. 217-219.

433. Peacock A., Verhoeve P., Rando N, van Dordrecht A., Taylor B.G., Erd C., Perryman M.A.C., Venn R., Howlett J., Goldie D.J., Lumely G., Wallis M. Single optical photon detection with a superconducting tunnel junction // Nature, 1996, v. 381, pp. 135-137.

434. Booth N.E., Goldie D.J. Superconducting particle detectors // Superconductor sci. technol. 1996, v. 9, pp. 493-516.

435. Kurakado M. An introduction to superconducting tunnel junction detectors // X-ray spectrometry. – 2000. – v. 29. – pp.137-146.

436. Hollas J.M. Modern spectroscopy, Wiley, 2004, 483 p.

437. Сороко Л.М. Принцип максимума энтропии и его применение для решения обратных задач // Физика элементарных частиц и атомного ядра, 1981, т. 12, вып. 3. с. 754-795.

438. Раутиан С.Г. Реальные спектральные приборы // УФН, 1958, т. 66, № 3, с. 475-515.

439. Shannon C. Communication in the presence of noise // Proc. IRE 1949. v. 37, No 1, pp. 10-21.

440. Picture processing and digital filtering. Edited by Huang T.S. Berlin, Springer, 1979, 289 p.

441. Реконструкция изображений. Под редакцией Г.Старка. М.Мир, 1992, 636 с.

442. Клепиков Н.П., Соколов С.Н. Анализ и планирование экспериментов методом максимального правдоподобия. М.: Физматлит, 1964, 184 с.

-
443. Frieden B.R. Restoring with maximum likelihood and maximum entropy // JOSA, 1972, v. 62, pp. 511-518.
444. Mastin G.A., Hanson R.J. Maximum entropy signal restoration with linear programming // Sandia report SAND88-0451, 1988. 31 p.
445. Remond G., Myklebust R., Fialin M., Nockolds C., Phillips M., Roques-Carnes C. Decomposition of wavelength dispersive x-ray spectra // Journal of research of the national institute of standards and technology. 2002, v. 107, N6 pp. 509-529.
446. Косарев Е.Л. Шенноновский предел сверхразрешения и его достижение при восстановлении сигналов // Приборы и техника эксперимента, 1989, № 4, с. 85-87.
447. Campbell J.L. Si(Li) detector response and PIXE spectrum fitting// Nuclear instruments and methods B. v.109/110, 1996, pp. 71-78.
448. Wegrzynek D., Markowicz A. Cuevas A.M. Evaluation of the energy-dispersive x-ray spectra of high-Z elements using Gaussian and Voigt peak shape profiles // X-ray spectrometry, v. 30, 2001, pp. 403-412.
449. Кучурин Е.С.; Шабалин Н.Я.; Каримов В.В.; Крысов А.А. Способ гамма спектрометрии. Патент RU 2159451.
450. Морозов В.А., Морозова Н.В. Формирование антикомптоновских гамма спектров методом квазидифференцирования // Приборы и техника эксперимента, 2000, № 4, с. 53-57.
451. Власик К.Ф., Грачев В.М., Дмитренко В.В., Соколов Д.В., Улин С.Е., Утешев З.М. Методика автоматической обработки информации с гамма спектрометра на основе сжатого ксенона // Приборы и техника эксперимента. – 2000. – № 6. – С. 5-10.
452. Ponchut C. Correction of the charge sharing in photon-counting pixel detector data // Nuclear Instruments and methods A591 (2008) pp. 311-313.

453. Criss J.W., Birks L.S. Calculation methods for fluorescent x-ray spectrometry. Empirical coefficients versus fundamental parameters // *Anal. Chem.* 1968, v.40, N 7, pp. 1080-1086.

454. Broll N. Quantitative x-ray fluorescence analysis. Theory and practice of the fundamental coefficient method // *X-ray spectrometry*, v. 15, pp. 271-285.

455. Карманов В.И., Походня И.К., Марченко А.Е. Рентгеноспектральный анализ с одним эталоном и корректировкой интенсивности на ЭВМ // *Зав. лаб.*, 1972, т.38, № 2, с. 167-169.

456. Pavlinsky G.V., Dukkhanin A.Yu., Calculation of photo and Auger electron contribution to x-ray fluorescence excitation of elements with low atomic number // *X-ray spectrometry*, 1994, v.23, pp. 221-228.

457. Савельев С.К., Бахтиаров А.В., Семенов В.Г., Климова Н.Б. Виртуальный рентгенофлуоресцентный спектрометрический комплекс для обучения и исследований // *Научное приборостроение*, 2015, т.25 № 1 С.76-82.

458. Schmidt V. Electron spectrometry of atoms using synchrotron radiation. Cambridge, 1997, 431 p.

459. Szaloki I., Szegedi S., Varga K., Braun M., Osan J., Grieken R.V. Efficiency calibration of energy dispersive detectors for application in quantitative x- and gamma ray spectroscopy. *X-ray spectrometry*, 2001, v.30, pp. 49-55.

460. Горнов М.Г., Гуров Ю.В., Осипенко Б.П., Подкопаев О.И., Солдатов А.М., Юрковски Я. Планарные детекторы из особо чистого германия // *Приборы и техника эксперимента*. – 1990. – №4. – С.83-85.

461. Арефьев В.А., Бугров В.П., Давиденко Н.И., Карпов Ю.М., Копылевич Н.М., Перьков А.И., Федотов С.Н., Шармак М.П. Позиционно чувствительный гамма спектрометр // *Приборы и техника эксперимента*. – 1990. – №3. – С. 20-24.

-
462. Белых В.В., Смагунова А.Н., Козлов В.А. Многократно рассеянное излучение при рентгенорадиометрическом анализе // Журнал аналитической химии. – 1994. – т.49, №10. – С. 1092-1096.
463. Абденби А., Солодовников А.И., Манойлов В.В., Заруцкий И.В. Спектральные преобразования в приспособленном базисе для разделения «наложившихся» пиков и фильтрации масс-спектрометрических сигналов // Научное приборостроение, 2007, т. 17, № 1, с. 103-114.
464. Pavlinsky G.V., Duhanin A.Yu., Portnoy A.Yu. The excitation of x-ray fluorescence of elements with small Z by radiation from thin-window x-ray tubes // Radiation Physics and Chemistry. – 2001. – v.62, N.2-3. – pp.207-213.