

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ ЕЛЕКТРОФІЗИКИ І РАДІАЦІЙНИХ ТЕХНОЛОГІЙ

Кульментьєв Олександр Іванович

538.915; 539.94; 539.124.6

**ІДЕНТИФІКАЦІЯ СТРУКТУРИ ТВЕРДИХ ТІЛ НА ОСНОВІ
ЯДЕРНО-ФІЗИЧНИХ МЕТОДІВ ТА КОМП'ЮТЕРНОГО
МОДЕЛЮВАННЯ**

01.04.07 – фізика твердого тіла

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т

дисертації на здобуття наукового ступеня
доктора фізико-математичних наук

Харків – 2015

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана у Інституті прикладної фізики НАН України, м. Суми.

Науковий консультант: академік НАН України,
доктор фізико-математичних наук, професор
Сторіжко Володимир Юхимович,
Інститут прикладної фізики НАН України, директор

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор
Яновський Володимир Володимирович,
Інститут монокристалів НАН України, завідувач відділу теорії конденсованого стану матерії

доктор фізико-математичних наук, професор
Лазурик Валентин Тимофійович,
Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна,
професор кафедри моделювання систем і технологій факультету комп'ютерних наук

доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
Туркін Анатолій Аркадійович,
Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України, начальник лабораторії радіаційної фізики твердих тіл і ядерних реакцій відділу теорії конденсованих середовищ і ядерної матерії

Захист відбудеться «02» листопада 2015 р. о 13⁰⁰ годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.245.01 у Інституті електрофізики і радіаційних технологій НАН України за адресою: 61003, м. Харків, вул. Гамарника, 2, корпус У-3, НТУ «ХП», ауд. 204.

З дисертацією можна ознайомитись у бібліотеці Інституту електрофізики і радіаційних технологій НАН України за адресою: 61024, м. Харків, вул. Гуданова, 13.
Відгук на автореферат дисертації надсилати на адресу: 61002, м. Харків, вул. Чернишевського, 28, а/с 8812.

Автореферат розісланий «29» вересня 2015 р.

Учений секретар
спеціалізованої вченої ради Д 64.245.01



Пойда А.В.

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми дослідження. Одна з характерних тенденцій у розвитку сучасної науки і техніки полягає в тому, що рішення багатьох задач зводиться до розробки нових матеріалів, що мають комплекс заздалегідь заданих властивостей. Наприклад, для забезпечення високих міцнісних властивостей необхідні матеріали з однорідним розподілом невеликих зерен, мінімумом сегрегації домішок і високою просторовою щільністю невеликих, нанометрових виділень, необхідних для стабілізації дислокацій і меж зерен.

З загальної точки зору поведінка матеріалу регулюється законами термодинаміки, яка визначає напрям еволюції структури для заданого складу матеріалу, тиску, температури і т. п., та кінетики, яка задає конкретний шлях еволюції системи до рівноважного стану. При цьому суттєво, що в багатьох випадках потрібні властивості матеріалу визначає не близька до термодинамічної рівноваги структура, а та, яка відповідає сильно нерівноважному стану. Одержання останньої в процесі обробки матеріалу може бути досягнуто за рахунок різних мікроструктурних перетворень, таких як пластична деформація, фазові переходи, дифузія, рекристалізація, зростання зерен і т. п.

Мікроструктура може бути визначена як сукупність всіх термодинамічно нерівноважних дефектів решітки, просторові масштаби яких змінюються в інтервалі від часток нанометра (нерівноважний домішковий атом) до декількох метрів (поверхня виробу в цілому). У стільки ж широкому інтервалі змінюються і тимчасові характеристики дефектів: від пікосекунди (період атомних коливань) до декількох років (корозія, повзучість). Відповідно в структурі прийнято виділяти кілька рівнів: мікрорівень, мезорівень та макрорівень.

При вирішенні технічних задач потрібно також враховувати, що кінцевий виріб часто експлуатується в умовах складних зовнішніх впливів, які призводять до безперервної модифікації його вихідної структури. Характерним прикладом можуть служити матеріали, призначені для ядерної енергетики. В даний час сформувався цілісне уявлення про складний комплекс фізичних процесів, які протікають в опромінюваних матеріалах. З мікроскопічної точки зору в їх основі лежить поява в матеріалі радіаційних дефектів і подальша взаємодія з вихідними дефектами (наприклад, дислокаціями).

Проте незважаючи на те, що весь комплекс фізичних процесів, які при цьому протікають, принципово зрозумілий, спроби поліпшення експлуатаційних характеристик матеріалів стикаються зі значними труднощами. Причина полягає в тому, що зміни властивостей є наслідком спільної дії всіх процесів, причому ці процеси протікають одночасно і приводять в результаті до безперервної еволюції характеристик середовища, в якій відбувається кожен з них. В результаті між ними виникає складна нелінійна взаємодія, яка в загальному випадку може залежати і від дози опромінювання.

Для вирішення таких складних завдань необхідно використовувати весь арсенал засобів сучасної фізики: теорію, експеримент і комп'ютерне моделювання. Подібний інтегрований підхід повинен базуватися на надійно визначених в результаті лабораторних вимірювань даних про властивості структури і її дефектів. Оскільки будь-який дефект є порушення кристалічної матриці, то для цієї мети підходять

лише неруйнівні методи аналізу. Як правило, в таких методах вимірюється відгук досліджуваного зразка на деякий зовнішній вплив. Так як існує велика кількість різних складових мікроструктури, які можуть бути розподілені в межах всього зразка, то зовнішній вплив, по-перше, має характеризуватися високою вибірковістю, тобто можливістю виділення з усіх дефектів якогось одного, і, по-друге, мати можливість визначення просторового розподілу обраного дефекту.

З цієї точки зору великі можливості мають ядро-фізичні методи аналізу, оскільки в результаті варіювання типу зовнішнього випромінювання і характеристик пучка можна домогтися домінуючого внеску в реєстроване вторинне випромінювання від дефектів певного типу. Існують різні фізичні механізми такого переважання.

При дослідженні складових атомного рівня в деяких методах – таких як NRA (Nuclear Reaction Analysis) і PIXE (Particle Induced X-ray Emission) – домінування взаємодії зондуєчого іона з розглянутими структурними складовими є наслідком непружного характеру процесу і збудження характеристичних мод в ядерній або електронній підсистемі. Подібні процеси часто мають резонансний характер і відповідно – великий переріз. Для інших методів, таких як RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry), взаємодія має пружний характер і домінування цієї взаємодії має кінематичну природу, оскільки розсіювання іона на великий кут можливо тільки на важкому спочатку нерухомому атомі решітки.

При дослідженні відкритих дефектних утворень мезоуровня перспективним є використання у якості первинних частинок позитронів. Причиною цього є те, що після попадання в тверде тіло термолізований позитрон захоплюється переважно цими утвореннями, які мають надмірний негативний заряд, і тому утворюють для позитрона центри притягання. Як наслідок, позитрони пучка анігілюють переважно на відкритих дефектах мезоуровня, що дає змогу домогтися домінуючого внеску в вимірюваний сигнал від них порівняно з вкладом від матриці або інших дефектів в методі PALS (Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy).

Проте домінуючий характер взаємодії з вибраними складовими не означає, що вклади від інших складових повністю пригнічені. При цьому потрібно враховувати, що інтерпретація даних вимірювань зводиться до вирішення специфічною для кожного методу аналізу оберненої задачі розсіювання, а такі задачі, як правило, некоректні. Якщо в прямій задачі розсіювання вихідними даними вважаються характеристики джерела і структура мішені, а рішенням – перерозподіл випромінювання, то в зворотній задачі до вихідних даних відносяться характеристики джерела і перерозподіленого випромінювання, а результатом рішення має бути відновлення структури мішені. Аж до сьогоденного моменту цієї особливості завдання інтерпретації даних лабораторних вимірювань в літературі не приділялося належної уваги. Для некоректної задачі необхідно перевизначити саме поняття рішення і розробити нові схеми для його пошуку.

При дослідженні еволюції мікроструктури теоретичні методи мають обмежені можливості, оскільки необхідно розглядати спільну еволюцію дефектів на різних рівнях зі складною нелінійною взаємодією. В результаті у рівняння стану або кінетичні рівняння обов'язково входять вільні параметри і помилки в теоретичних моделях можуть бути компенсовані за рахунок неправильного вибору параметрів.

Від цього недоліку вільні методи багаторівневого комп'ютерного моделювання (БКМ), які в своїй основі є першепринциповими. Одна з основних проблем в послідовних схемах БКМ полягає в передачі інформації від даного рівня до наступного, оскільки невирішеність цієї проблеми не дає поки що змоги повною мірою використати потенційні можливості нового напрямку в матеріалознавстві. На кожному рівні при проведенні комп'ютерного експерименту накопичується величезний обсяг вихідних даних результатів вимірювань, і передача інформації на наступний рівень передбачає виділення деяких інтегральних характеристик в цих даних. Таке виділення специфічно для кожного рівня і, наприклад, на атомному рівні один з варіантів полягає у виявленні кластера частинок з чітко визначеною поверхнею і вимірюванні інтегральних властивостей цього кластера. Такі властивості можуть служити вихідною інформацією на наступному, мезоскопічному рівні.

Таким чином при розробці нових матеріалів актуальною є задача підвищення достовірності та надійності результатів досліджень властивостей дефектів твердих тіл на різних рівнях і встановленні зв'язків різних дефектів. Великими можливостями для вирішення цієї задачі має підхід, заснований на спільному використанні ядерно-фізичних методів аналізу та багаторівневого комп'ютерного моделювання.

Зв'язок роботи з науковими планами і програмами. Дисертація виконана в теоретичному відділі Інституту прикладної фізики (ІПФ) НАН України в рамках таких напрямків наукової діяльності Інституту прикладної фізики НАН України, затверджених Президією НАН України: дослідження процесів взаємодії іонів, електронів і фотонів з речовиною; розробка ядерно-фізичних методів дослідження структури і складу матеріалів. Обраний напрямок досліджень було пов'язано з держбюджетними науково-дослідними роботами: 9.02.01/017-92 по створенню аналітичного прискорювального комплексу ІПФ НАН України, №0101 U000056 (2001 – 2003 рр.) «Дослідження резонансних і когерентних кооперативних квантових процесів у електродинамічних, ядерних і багаточасткових системах: теорія і додатки», №0104U000217 (2004 – 2006 рр.); «Резонанси та структурні перетворення в квантовоелектродинамічних, хромодинамічних і багаточасткових системах під впливом зовнішніх полів і пучків швидких частинок», №0107U000314 (2007 – 2011 рр.) «Квантово-електродинамічні і колективні процеси в надсильних полях, зокрема при зіткненнях важких іонів і в задачі електронного охолодження», №0111U000550 (2012 – 2013 рр.) «Розробка цифрового спектрометра для вивчення дефектів вакансійного типу в конструкційних матеріалах методами електрон-позитронної анігіляції». «Польові підходи до проблем ядерної фізики та енергетики на базі квантової хромодинаміки і дослідження електродинамічних процесів і структурних ефектів при взаємодії пучків частинок з полями і речовиною», №0111U010612 (2012–2016 рр.) Дисертант брав участь у дослідженнях, написані звітів. За результатами досліджень під керівництвом здобувача захищена кандидатська дисертація.

Мета і завдання дослідження. Метою роботи є вирішення проблеми підвищення достовірності та надійності результатів досліджень структури твердих тіл за допомогою ядерно-фізичних методів аналізу і комп'ютерного моделювання. Для досягнення цієї мети необхідно було вирішити такі задачі:

1. Виконати аналіз характерних особливостей процедури одержання вихідних

даних в лабораторних і комп'ютерних експериментах, визначити природу їх спільності і відмінностей. Врахувати, що перша обставина заснована на фізичних особливостях предмета дослідження, а друга – на самому механізмі елементарного акту виміру.

2. Продовжити удосконалення теоретичної моделі формування корисного сигналу в методах аналізу, заснованих на взаємодії прискорених іонів з твердим тілом. Проаналізувати внесок багаторазових зіткнень первинних частинок та особливості їх енергетичного розподілу. Дослідити можливість використання в цієї задачі формалізму кватерніонів.

3. Розробити загальний підхід до задачі інтерпретації даних лабораторних вимірювань, який враховував би некоректний характер розв'язуваної оберненої задачі розсіювання. Класифікувати випадкові складові в експериментальному спектрі за механізмом їх виникнення на три великі групи: зв'язані з процесами, які було відкинуто в моделі формування корисного сигналу, з процесами, що протікають на інших складових мікроструктури твердого тіла (включаючи матрицю), і з процесами, які виникають внаслідок модифікації мішені під час експерименту.

4. Виявити специфічні особливості застосування розробленого підходу (зокрема, способів визначення узагальненого параметра регуляризації – УПР), на прикладі тих методів, що активно розвиваються в ІІФ НАН України, в яких:

- можливо в явному аналітичному вигляді вивести рівняння виходу (метод NRA); проаналізувати природу цього рівняння і існуючі підходи оцінки УПР;
- вимірюваний спектр є суперпозицією вкладів, що перекриваються (метод PIXE); дослідити можливість застосування при інтерпретації таких спектрів вейлет-аналізу;
- визначення профілів розподілу компонентів можливо звести до вирішення системи лінійних рівнянь і в яких дискретний спектр задає вектор правої частини (метод RBS); проаналізувати проблеми, що виникають при переході від безперервних функціональних просторів, елементом яких є профіль розподілу по глибині, до дискретних, сіткових, в яких профіль описується при вирішенні задачі на ЕОМ;
- вимірюваний спектр є суперпозицію декількох корисних вкладів і випадкової складової (метод PALS); проаналізувати можливість визначення таких базисів, в яких ці компоненти належать двом непересічним підмножинам; дослідити питання про вибір довжини розкладання як способі визначення УПР.

5. Розробити робастний і ефективний в обчислювальному відношенні алгоритм, що дає змогу при атомістичному моделюванні визначати атоми поверхні і її опис як цілого; у разі замкнутої поверхні (наприклад, компактних кластерів або локальних дефектних утворень) розробити метод обчислення довільних інтегралів по обмеженому поверхнею обсягу, а також метод обчислення такої загальної характеристики, як форма утворювання.

6. Дослідити можливість застосування цих методів для вивчення еволюції властивостей атомних кластерів, які самопідтримуються, при зміні числа частинок і локальних дефектних утворень, наприклад, вакансійних пор при їх стисненні.

Об'єкт дослідження – структура твердих тіл на різних просторово-часових масштабах.

Предмет дослідження – фізичні процеси, що протікають в твердому тілі в рі-

зних пучкових методах аналізу і формують експериментальний спектр.

Методи дослідження – у відповідності з поставленими задачами в роботі використовувалися різноманітні методи теоретичної, обчислювальної фізики та прикладної математики: формалізм кватерніонів, вейвлет-аналіз, цифровий спектральний аналіз, методи розв'язання обернених і некоректних задач, різні існуючі підходи оцінки параметра регуляризації, методи комп'ютерного моделювання ансамблів класичних частинок (метод молекулярної динаміки – ММД), а також мова програмування FORTRAN.

Наукова новизна одержаних результатів полягає в тому, що:

1. Вперше здійснено теоретичний опис та розроблено конкретні алгоритми, які дають змогу розрахувати узагальнений кінематичний множник і переріз розсіювання для іонів, що зазнали два послідовних зіткнення з атомами мішені; виявлено характерні особливості цих величин.

2. Вперше виявлено, що для занурених у газ великих об'єктів (броунівських частинок або молекул) поблизу межі твердого тіла внаслідок ефекту затінення виникає анізотропія в розподілі щільності потоку падаючих частинок. Результатом є виникнення додаткового ефективного притягання об'єкта до межі, що має кінематичну природу.

3. Запропоновано нові граничні умови (ковзаючі граничні умови), які є наступним кроком на шляху зменшення впливу скінченності розрахункової ячейки на одержувані при комп'ютерному моделюванні результати.

4. Вперше запропоновано загальний підхід обробки даних натурних вимірювань в довільному, заснованому на використанні пучків зондуючих частинок методі аналізу, який враховує некоректний характер розв'язуваної оберненої задачі розсіювання. Проведено класифікацію випадкових складових в експериментальному спектрі на групи у відповідності з різними механізмами виникнення.

5. Розроблено новий чисельний метод, що дає можливість при комп'ютерному моделюванні атомних систем детектувати появу компактних дефектних утворень з чітко визначеною поверхнею, виділяти атоми поверхні і описувати її структуру як цілого, обчислювати довільні інтегральні характеристики такого утворення. У підході, заснованому на геометричних моментах, для компонент вектору форми одержані точні аналітичні вирази.

Практичне значення одержаних результатів полягає в тому, що:

1. Удосконалено теоретичну модель, що описує формування корисного сигналу в методах аналізу твердих тіл з використанням пучків прискорених іонів. Удосконалення дає можливість адекватно описувати як енергетичний розподіл багаторазово розсіяних первинних частинок, так і ймовірності відповідних процесів, і, зокрема, розширює інтервал експериментального спектра, з якого відбувається вилучення корисної інформації.

2. Запропоновано загальний підхід обробки даних натурних вимірювань в довільному, заснованому на використанні пучків зондуючих частинок методі аналізу, що враховує некоректний характер розв'язуваної оберненої задачі розсіювання. Цей підхід дає змогу підвищити достовірність і надійність обробки результатів вимірювань геометричної структури та композиційного складу, що було продемонстровано на прикладі таких методах, які активно розвиваються в ІПФ

НАН України, як NRA, PIXE, RBS і PALS.

3. Розроблено чисельний метод, алгоритми та програмне забезпечення, що дають можливість при комп'ютерному моделюванні кристалічних твердих тіл детектувати появу компакної підмножини з дефектною кристалічністю, визначати його зовнішню межу і вимірювати геометричні інтегральні характеристики: об'єм, площа поверхні, коефіцієнт компактності, вектор форми, а також інші інтегральні властивості, що залежать від конкретного завдання. Це забезпечує зв'язок атомного та мезоскопічного рівнів при послідовному багаторівневому комп'ютерному моделюванні, що може бути використано при розробці нових матеріалів, наприклад, для ядерної енергетики.

Особистий внесок здобувача. У дисертаційну роботу увійшли результати досліджень, виконані автором самостійно, у співавторстві або під його безпосереднім керівництвом. Роботи [1-4] є розділами в колективних монографіях. Роботи [5-10, 16-20, 22, 24, 27, 32, 33, 39] та тези [40-46] написані у співавторстві. Здобувач провів всі комп'ютерні експерименти, включаючи розробку, написання, налагодження програмного забезпечення, оптимізацію методів і алгоритмів, проведення розрахунків, набір статистики, обробку результатів та їх трактування; брав участь в обговоренні результатів і в підготовці статей. Роботи [11-13, 14, 15] виконувалися безпосередньо під керівництвом здобувача. Роботи [21, 23, 25, 26, 28-31, 34-38] та тези [47] виконані автором одноосібно.

Апробація результатів дисертації. Результати дисертаційної роботи були представлені на таких наукових конференціях і семінарах: 29-й Всесоюз. семінар з моделювання на ЕОМ радіаційних та інших дефектів в кристалах (Алма-Ата, 1988 р.), III Всесоюзн. конф. Мікроаналіз на іонних пучках (Суми, 1990 р.) 31-й семінарі «Моделювання на ЕОМ дифузійних процесів в кристалах» (Суми, 1990 р.), XXI Всесоюзн. нарада з фізики взаємодії заряджених частинок з кристалами (Москва, 1991 р.), Materials Research Society (Boston, Massachusetts, 1993 р.), Industrial Applications of Ion Beam Implementation for Modifying Metal Properties (San Sebastian, Spain, 1995 р.), 2-nd Intern. conf. Modification of properties of surface layers of non-semiconducting using particle beams (Sumy, 1996 р.), 2-й науково-практичний симпозиум «Вакуумні технології та обладнання», присвячений 70-річчю ННЦ ХФТІ (Харків, 1998 р.), 6-а Міжнар. конф. Теорія і техніка передачі, прийому та обробки інформації (Нові інформаційні технології) (Харків, 1998 р.), Eighth Intern. Workshop on Ion Beam Surface Diagnostics (Uzhgorod, 1998 р.), Modification of surface layers of non-semiconducting materials using particle beams (Sumy, 1999 р.), V-th Intern. conf. Ion implantation and other applications of ions and electrons (Kazimierz Dolny, Poland, 2004 р.), 6-й та 7-й міжнар. науч. конф. Взаємодія випромінювань з твердим тілом (Мінськ, Білорусь, 2005 та 2007 рр.), 2-nd Intern. congress on Radiation physics, high current electronics and modification of materials, 8-th Intern. conf. on modifications with particle beams and plasma flows (Tomsk, Russia, 2006 р.), Intern. conf. Radiation interaction with material and its use in technologies (Kaunas, Lithuania, 2006 р.), XI Міжнар. конф. Фізика и нанотехнологія тонких плівок та наносистем (Івано-Франківськ, 2007 р.), Перша міжнар. наук. конф. Наноструктурні матеріали (Мінськ, Білорусь, 2008 р.), Конф. Фізика, електроніка та електротехніка (Суми, 2011 р.), XX Міжнар. конф. з фізики радіаційних явищ і радіаційного матеріалоз-

навства (Алушта, 2012 р.).

Публікації: Основні результати дисертації опубліковано в 47 роботах, у тому числі в 4 монографіях, 34 статтях, з них у вітчизняних спеціалізованих наукових журналах (15) і наукових міжнародних журналах (16), та тезах (8) і матеріалах конференцій (3), із них 24 статті індексуються науково-метричною базою даних.

Структура та обсяг роботи. Робота складається з вступу, семи розділів, висновків, списку використаних джерел, що містить 294 найменувань, і двох додатків. Обсяг дисертації становить 337 сторінок, з яких 301 – основний текст, 85 рисунків і 7 таблиць, в тому числі 41 рисунок на окремих 22 аркушах.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовано актуальність теми роботи, сформульовано мету і завдання дослідження, представлені методи, об'єкт і предмет дослідження, а також відзначена наукова новизна та практичне значення одержаних результатів, надається інформація про їх апробації та публікаціях, описана структура та обсяг дисертації.

У **першому розділі** виконано огляд літературних даних існуючого стану використання ядерно-фізичних методів аналізу для ідентифікації структури твердих тіл і сучасних підходів до опису властивостей і еволюції конденсованих фаз в рамках багаторівневого комп'ютерного моделювання.

У **другому розділі** «Теоретичний опис процесів багатократного розсіювання в методах аналізу на пучках частинок» вдосконалена теоретична модель, що описує формування корисного сигналу в таких методах. Важливість цих досліджень обумовлена тим, що зростаючі вимоги практики роблять актуальною задачу більш повного вилучення інформації з експериментальних спектрів. Традиційний шлях полягає в удосконаленні теоретичного опису процесів, що впливають на формування сигналу. Однією з невирішених проблем є адекватний опис процесів багатократного розсіювання частинок пучка.

У загальному випадку в спектрі можуть бути присутніми вклади від часток з різною кратністю зіткнень. Ці вклади накладаються один на одного, і нероздільні в натурному експерименті, оскільки частинки з різною кратністю відрізняються лише своєю історією, яка має місце всередині зразка. З іншого боку їх легко розділити в комп'ютерному експерименті. Для опису вкладу від частинок, які зазнали кілька (у найпростішому випадку два) послідовних зіткнень, необхідний формалізм, який дає можливість оцінити їх енергетичний розподіл (кінематичний множник) і ймовірність відповідного процесу (переріз розсіювання). При розробці теорії використовувалася звичайна парадигма, коли спочатку виконується експеримент, а потім пропонується модель, яка пояснює спостережувані закономірності. Проте на відміну від традиційного підходу аналізувалися дані не натурних, а комп'ютерних експериментів.

Для цього на початку розділу виконано порівняльний аналіз різних варіантів методу молекулярної динаміки: TDMD (Time Driven Molecular Dynamic) і EDMD (Event Driven Molecular Dynamic), що реалізуються для безперервних і розривних форм потенціалу міжчасткової взаємодії. Вказані їх переваги та недоліки, а також найбільш характерні області додатків. В рамках методу EDMD розроблено про-

грамне забезпечення, що дає змогу моделювати динамічну еволюцію системи твердих сфер та проведено його тестування.

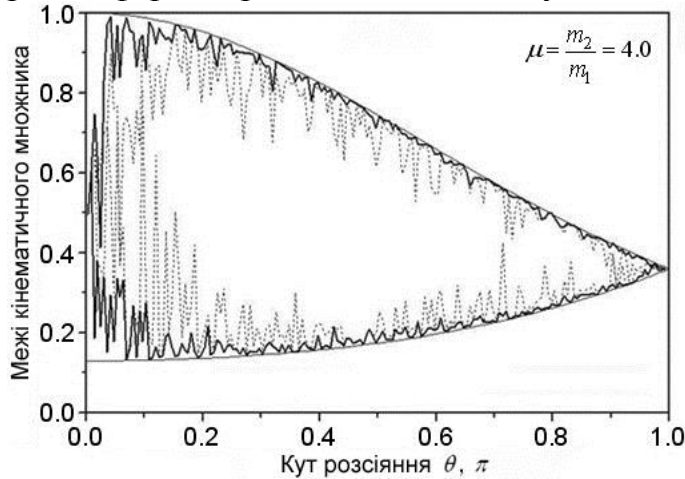


Рис.1. Залежності $\tilde{K}_{\min}(\theta)$ і $\tilde{K}_{\max}(\theta)$, виміряні в рамках EDMD-моделі для наступних параметрів експерименту: $\Delta\theta = 1^\circ$, $N = 1\,500$ (пунктир), $N = 6\,000$ (товста суцільна лінія) та $N = 1\,000\,000$ (тонка суцільна лінія) випробувань

У дисертації показано, що кінематичний множник $\tilde{K}(\theta)$ для частинок, що розсіюються в результаті двох послідовних зіткнень з атомами мішені на кут θ , належить деякому інтервалу $[\tilde{K}_{\min}(\theta), \tilde{K}_{\max}(\theta)]$, межі якого не залежать від потенціалу міжчасткової взаємодії. З рис.1 видно, що дійсно при збільшенні числа випробувань, виконаних в рамках моделі EDMD, мінімальне і максимальне значення енергії, які може мати іон маси m_1 , що розсіюється в результаті двох послідовних зіткнень з атомами мішені маси m_2 на кут θ , збігається до певних значень.

Для розрахунку цих значень були запропоновані два формалізму, перший з яких заснований на кутах Ейлера, а другий – на кватерніонах. Обидва формалізми приводять до однакових результатів, проте у другому випадку незалежні змінні мають безпосередній фізичний сенс, що дало можливість встановити загальні якісні закономірності процесів дворазових зіткнень.

Зокрема, було показано, що для екстремальних значень енергії задача розсіювання є плоскою, тобто обидва зіткнення відбуваються в одній і тій же площині, що збігається з площиною однократного зіткнення. При цьому, якщо θ_1 – кут розсіювання в першому, а θ_2 – у другому зіткненні, то для $\tilde{K}_{\max}(\theta)$: $\theta_1 = \theta_2 = \theta/2$, а для $\tilde{K}_{\min}(\theta)$: $\theta_1 = \theta_2 = \pi - \theta/2$. Відповідно,

$$\tilde{K}_{\max}(\theta) = K(\theta_1)K(\theta_2) = K^2(\theta/2), \quad (2.1)$$

$$\tilde{K}_{\min}(\theta) = K(\theta_1)K(\theta_2) = K^2(\pi - \theta/2), \quad (2.2)$$

де $K(\theta)$ – кінематичний множник однократного зіткнення. З використанням стандартного виразу для останнього одержано загальний вираз для меж енергії іона маси m_1 , що розсіюється в результаті двох послідовних зіткнень з атомами мішені маси m_2 на кут θ ,

$$\tilde{K}_{\min}^{\max}(\mu, \theta) = \frac{1}{(1 + \mu)^4} \left[\pm \cos \frac{\theta}{2} + \sqrt{\mu^2 - \sin^2 \frac{\theta}{2}} \right]^4, \quad (2.3)$$

де $\mu = m_2/m_1$. Одна з поверхонь, що визначається формулою (2.3) для випадку $\mu \geq 1.0$, показано на рис.2. Графіки функцій (2.3) в окремому випадку $\mu = 4.0$ точно збігаються з даними комп'ютерних експериментів на рис.1 для $N = 1\,000\,000$.

Для пояснення одержаних залежностей зауважимо, що $K(0) \equiv 1$ для будь-яких значень μ . Дійсно, одноразове розсіювання частинки на нульовий кут, по суті, означає відсутність її взаємодії з центром що розсіює. В результаті енергія частинки залишається незмінною. Це твердження справедливо і для дворазового розсію-

вання, оскільки при $\theta_1 = \theta_2 = 0$ повний кут розсіювання також дорівнює нулю. Тому $\tilde{K}_{\max}(0) \equiv 1$ для всіх значень μ . Проте, для $\theta = 0$ існує множина нетривіальних процесів розсіювання таких, що падаюча частинка продовжує рух у вихідному напрямі після двох реальних зіткнень, в кожному з яких її енергія зменшується в $K(\theta_1)$ разів, за умови $\theta_2 = -\theta_1$. Відомо, що $K(\theta)$ має мінімальне значення при $\theta = \pi$, і тому $\tilde{K}_{\min}(0) \equiv K^2(\pi)$. Аналогічні закономірності мають місце і при розсіянні частинки на довільний кут $\theta \neq 0$. У результаті поверхні екстремальних значень узагальненого кінематичного множника визначаються формулою (2.3).

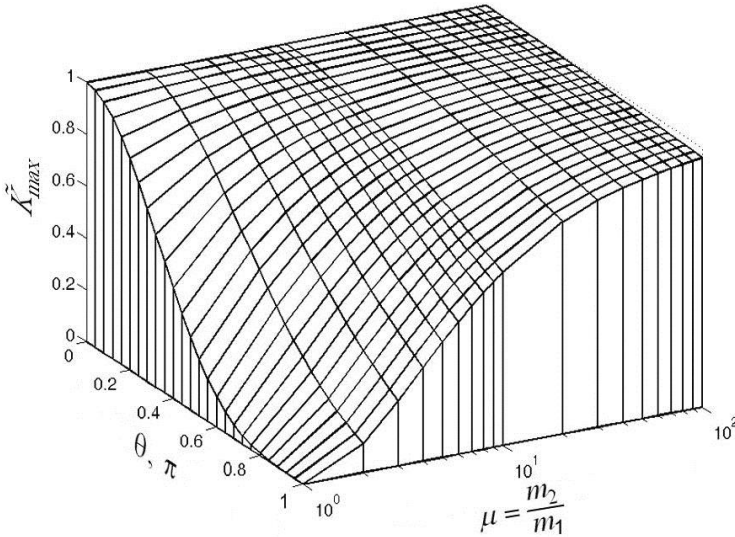


Рис.2. Поверхня максимального значення узагальненого кінематичного множника для $\mu \geq 1$

На відміну від кінематичного множника переріз розсіювання залежить від потенціалу взаємодії іона пучка з атомом мішені. Тому для конкретного експерименту переріз розсіювання можна виміряти лише за допомогою TDMD-моделі. Проте в рамках EDMD-моделі можна досліджувати загальні якісні закономірності цієї величини. Результати

одного з таких експериментів показані на рис.3, а.

В експерименті розглядалася мішень, яка складається з двох просторово розділених однакових твердих сфер, і на яку прямував паралельний пучок частинок. У вибраній системі координат вісь, яка з'єднує дві сфери, лежала в площині $\varphi = \pi$ і була орієнтована під кутом $\theta = \pi/2$ щодо осі пучка. Характерним лінійним розміром моделі є R – сума радіусів однією зі сфер і частинки пучка, який вибирався в якості одиниці вимірювання довжини.

В експериментах варіювалася відстань Δ між центрами сфер мішені. Розглядалося однорідний розподіл часток у площині, перпендикулярної напрямку осі пучка. Падаючі частинки вибиралися в цій площині випадково, і експеримент тривав доки число частинок, що випробували два послідовних розсіювання, не досягало 10^7 .

Для порівняння було виконано експеримент по вимірюванню перерізу однократного розсіювання. Відомо, що в цьому випадку повний переріз розсіювання дорівнювалося π . Ця умова, по-перше, було використано при тестуванні розробленого програмного забезпечення, а по-друге, – дало можливість оцінити нижню межу числа необхідних випробувань. Як і слід було очікувати, переріз однократного розсіювання не залежало від азимутального кута φ , що є наслідком наявності осі симетрії, що збігається з полярною віссю. Іншими словами, система симетрична щодо будь-якій площини з пучка площин, що проходять через полярну вісь. Вимірний диференціальний переріз був відмінним від нуля для всіх кутів θ і φ , тобто легка частинка, яка налітає, після розсіювання на більш важкому спочатку нерухомому атомі мішені може бути детектована в будь-якому тілесному куті.

Симетрія пари атомів набагато нижче – з усіх площин симетрії, характерних для одноразового розсіювання, залишається одна, а саме площина, в якій лежить як вісь пучка, так і відрізок, що з'єднує центри атомів. У розглянутих експериментах – це площина, яка відповідає куту $\varphi = \pi$. З рис.3, а видно, що переріз $\sigma(\theta, \varphi)$ дворазового розсіювання дійсно симетричний щодо цієї площини. Зниження симетрії функції $\sigma(\theta, \varphi)$ – це перша відмінність процесів одно- та дворазового розсіювання.

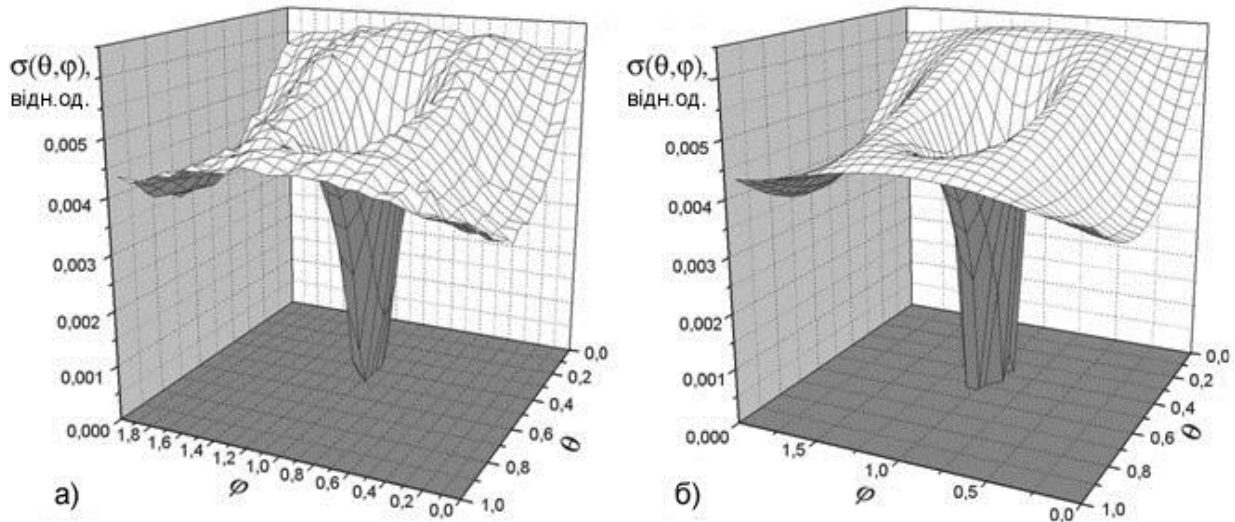


Рис.3. а) результат комп'ютерного експерименту з вимірювання в моделі твердих сфер диференціального перерізу дворазового розсіювання $\sigma(\theta, \varphi)$ для $\Delta = 4R$. б) розрахунок $\sigma(\theta, \varphi)$ для тих же умов за допомогою запропонованого в дисертації формалізму. Величина перерізу приведена в одиницях, для яких $R = 1$. Усі кути вимірюються в долях π

Друга відмінність пов'язана з монотонним зменшенням величини перерізу по мірі збільшення відстані Δ між розсіюючими центрами, що пов'язано зі зменшенням величини тілесного кута $\Delta\Omega$, в який після першого розсіювання повинна потрапити частинка, що налітає, щоб випробувати друге розсіювання. Для порівняння зауважимо, що в розглянутих експериментах максимальне значення перерізу однократного розсіювання приблизно в 55 разів більше, ніж на рис.3.

І, нарешті, третє, найбільш вагома відмінність полягає в тому, що для дворазового розсіювання характерно існування області "тіні", в яку не потрапляють частинки вихідного пучка. На рис.3 область тіні відповідає різкому зменшенню величини диференціального перерізу до нуля. Поява такої області пов'язана з тим, що після першого розсіювання траєкторії іонів утворюють розбіжний пучок, і другий атом, поміщений у цей пучок, буде відкидати "тінь", кутові характеристики якої визначаються величиною тілесного кута $\Delta\Omega$.

Таким чином, виконані комп'ютерні експерименти показали, що перерізи одно- та дворазового розсіювання якісно відрізняються один від одного і тому останнє, в принципі, не можна факторізувати. Некоректне визначення перерізу дворазового розсіювання є загальним недоліком виконаних досі досліджень, присвячених обліку вкладу багаторазових зіткнень в спектр RBS.

У дисертації одержано загальний вираз для перерізу розсіювання на довільному центрі, який не має сферичної симетрії. Потім це вираження було застосовано в найцікавішому для методу RBS окремому випадку розсіюючого центру, який являє собою сукупність двох просторово розділених, сферично симетричних екра-

нованих кулонівських потенціалів.

Розглядалися лише такі потенціали, для яких між падаючими і розсіяними частинками існує взаємно-однозначне безперервне співвідношення. З умови збереження числа частинок було одержано загальний вираз для диференціального перерізу:

$$\sigma(\Omega) = \frac{\rho}{\sin \theta} \cdot \frac{d\rho d\varphi_{in}}{d\theta d\varphi_{out}}, \quad (2.4)$$

де θ – кут розсіювання, $ds = \rho d\rho d\varphi_{in}$ – нескінченно малий елемент площі такий, що всі частки пучка, які пройшли через нього, після розсіювання на центрі, що розглядається, будуть детектовані в нескінченно малому елементі $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi_{out}$ тілесного кута. Для центру, який не має сферичної симетрії, $\varphi_{in} \neq \varphi_{out}$.

Нескінченно малий елемент $d\theta d\varphi_{out}$ в криволінійних координатах (ρ, φ_{in}) можна записати у вигляді

$$d\theta d\varphi_{out} = |J| \cdot d\rho d\varphi_{in}, \quad (2.5)$$

де J – функціональний визначник (якобіан) прямого перетворення:

$$J = \frac{D(\theta, \varphi_{out})}{D(\rho, \varphi_{in})} = \frac{\partial \theta}{\partial \rho} \cdot \frac{\partial \varphi_{out}}{\partial \varphi_{in}} - \frac{\partial \theta}{\partial \varphi_{in}} \cdot \frac{\partial \varphi_{out}}{\partial \rho}. \quad (2.6)$$

Отже,

$$\sigma(\Omega) = \frac{\rho}{\sin \theta} \cdot \frac{1}{|J|}. \quad (2.7)$$

Якщо перетворення $(\rho, \varphi_{in}) \leftrightarrow (\theta, \varphi_{out})$ не тільки неперервні, але і мають безперервні частинні похідні першого порядку, то вираз (2.7) можна записати в еквівалентному вигляді

$$\sigma(\Omega) = \frac{\rho}{\sin \theta} \cdot \left| \frac{D(\rho, \varphi_{in})}{D(\theta, \varphi_{out})} \right|. \quad (2.8)$$

В експериментах з розсіювання незалежними є змінні (θ, φ_{out}) , що визначають орієнтацію детектора. Проте у формули (2.7), (2.8) входять як θ , так і ρ , а також частинні похідні будь-якого з перетворень $(\rho, \varphi_{in}) \leftrightarrow (\theta, \varphi_{out})$. Тому практична процедура обчислення перерізу $\sigma(\Omega)$ повинна в явному вигляді включати чисельну схему, що реалізує подібні перетворення.

У дисертації, по-перше, було показано, що для сферично симетричного потенціалу вираз (2.8) переходить в стандартну формулу для перерізу розсіювання. По-друге, була розроблена схема обчислення $\sigma(\Omega)$ для двох просторово розділених, сферично симетричних потенціалів, результати застосування якої для двох твердих сфер показані на рис.3, б. З рисунка видно, що між даними теорії і експерименту існує дуже гарна згода.

Таким чином, запропонований у дисертації метод обліку вкладів кратних зіткнень в спектр RBS являє собою гібрид двох існуючих в літературі підходів. Один з них – метод статистичних випробувань (метод Монте-Карло – МК), – полягає в моделюванні траєкторій частинок з випадковими початковими умовами, що дозволяє врахувати внесок у спектр RBS іонів з довільною кратністю зіткнень. Проте для одержання статистично достовірних результатів необхідно провести величезну кількість випробувань, і крім того при такому підході важко встановити якісь зага-

льні фізичні закономірності.

В іншому підході (як і в моделі одноразового розсіювання) мішень розбивається на кінцеве число областей і розраховується внесок у спектр від усіх можливих пар областей. Для цього необхідно відновити енергетичну історію єдиного іона від точки входу в мішень до центру, який розсіює та тепер представляє пару областей, і від центру до виходу з мішені, що дозволить визначити в якому каналі аналізатора будуть детектовані такі іони. Величина вкладу задається перерізом розсіювання.

Другий підхід набагато ефективніше першого, проте його принциповим недоліком є те, що у виконаних раніше дослідженнях шукане переріз визначався у вигляді добутку перерізів розсіювання на кожній з областей пари. Проведені в рамках моделі EDMD комп'ютерні експерименти показали, що подібне наближення принципово помилково.

З фізичної точки зору це пов'язано з тим, що за визначенням диференційний переріз $\sigma(\theta)$ – це частка числа частинок, які розсіюються в одиничний тілесний кут у напрямку кута θ за умови, що в падаючому плоско-паралельному пучку в одну секунду через одиничну поверхню проходить одна частинка. Проте після першого розсіювання траєкторії іонів утворюють пучок, якій розходиться, а не є паралельним, і тому до другого зіткнення звичайна формула для перерізу непридатна. Як наслідок, при описі вкладу дворазового розсіювання в спектр RBS необхідно розглядати розсіювання на двох областях мішені як єдину подію.

Це зроблено у запропонованому в дисертації підході. При цьому для визначення величини перерізу дворазового розсіювання від розглянутої пари областей мішені потрібно відновити траєкторію декількох іонів, частина з яких, як і в методі МК, вибирається випадковим чином.

Незважаючи на модельний характер потенціалу міжчасткової взаємодії в методі EDMD, останнім часом він широко і успішно використовується при дослідженні загальних якісних закономірностей в поведінці різних систем, що було продемонстровано в даному розділі. В якості інших прикладів з області фізики твердого тіла можна вказати: комп'ютерні експерименти з вивчення структури плівок, одержуваних у результаті осадження частинок [48], а також дослідження процесів аморфізації та переходу в склоподібний стан [49].

У дисертації з усіх різноманітних дефектів твердого тіла найдокладніше розглядалися пори, які часто виникають в реакторних матеріалах. Так, у розділі 5 описано новий підхід до інтерпретації даних лабораторних вимірювань в спектрометрії PALS при дослідженні дефектів вакансійного типу. У розділах 6 і 7 запропоновано оригінальний метод виявлення в твердому тілі кластера частинок з чітко визначеною поверхнею, вимірювання інтегральних властивостей цього кластера (наприклад, вектора форми), а далі розглянуто варіант застосування цього методу при вивченні процесів стиснення пори.

Маючи це на увазі, наприкінці розділу 2 в рамках моделі EDMD була виконана серія комп'ютерних експериментів з вивчення фізичних процесів в газонаповнених порах. При цьому розглядався окремий випадок пор, в яких атоми газу мають набагато менші розміри і масу, ніж атоми матриці. У подібних порах еволюція атома, що десорбує, нагадує процес випадкових блукань броунівський частинки.

Дійсно, експерименти показали, що при використанні пружних граничних умов в центрі пори траєкторія частинки, що десорбує, є надзвичайно заплутаною тривимірною кривою. Проте поблизу межі ситуація якісно змінюється. З рис.4 видно, що в проміжку 27 – 31 пс частинка, відбившись від межі, не повертається відразу всередину розрахункової ячейки, а протягом деякого часу залишається поблизу межі.

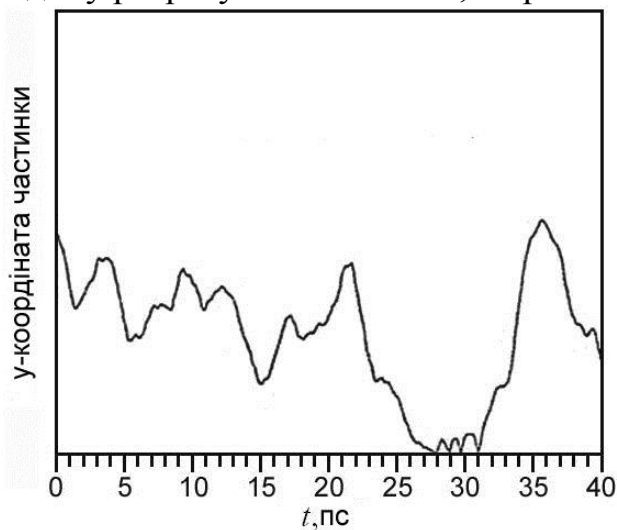


Рис.4. Залежність від часу у-координати частинки в процесі її блукань у фіксованій розрахунковій ячейці. Діапазон зміни у відповідає інтервалу, доступному для руху центру мас частинки вздовж цієї осі

Іншими словами, в цьому тимчасовому проміжку частинка здійснює уздовж осі у малі коливання. Аналіз же двох інших координат показав, що вони змінюються також, як і у випадку двовимірних випадкових блукань. Отже, в даній системі можна виділити два режими випадкових блукань: тривимірні,

які мають місце тоді, коли частинка досить віддалена від межі, і квазидвумірні, при яких частинка протягом деякого часу блукає вздовж межі. В останньому випадку межа як би утримує частинку, не дозволяючи їй вийти, так що в перпендикулярному напрямку частинка може здійснювати лише малі коливання, періодично відбиваючись від межі.

Таким чином експерименти показали, що, в газонаповненої порі можуть реалізовуватися два режими поведінки частинки, що десорбується, – "об'ємний" і "поверхневий". В основі будь-якого з них лежать зіткнення частинки з атомами газу. Якщо частинка достатньо віддалена від межі, то атоми газу однаково бомбардують її з усіх боків. Ця симетрія порушується в безпосередній близькості від межі. При цьому частинка відчуває в середньому більше ударів зі сторони, що звернена всередину пори, чим зі сторони, яка орієнтована до поверхні. Цей дисбаланс і проявляється у вигляді деякої спрямованої до поверхні сили, яка діє на частинку поблизу поверхні.

Ця сила не пов'язана з якимись новими взаємодіями, а має кінематичну природу. Її наявність необхідно враховувати при дослідженні процесів адсорбції і десорбції, а також еволюції форми пори. Відносний вплив цієї сили буде зростати зі збільшенням температури, оскільки при цьому буде зростати і імпульс, який передано атомом газу при зіткненні з частинкою.

У **третьому розділі** «Інтерпретація даних вимірювань структури твердих тіл в ядерно-фізичних методах аналізу» сформульовано загальний підхід до вирішення обернених задач, що виникають при інтерпретації даних вимірювань структури твердих тіл в рамках ядерно-фізичних методів аналізу. Спочатку представлено класифікацію існуючих методів і показано, що в будь-якому з них потрібно вирішувати специфічну зворотну задачу розсіювання. Тобто, якщо q – шукане рішення, що визначає характеристики розглянутого елемента структури, f – розподіл реєстрованого випромінювання, а A – оператор прямої задачі, то $Aq = f$. В силу некоректного характеру оберненої задачі спроба її вирішення за загальним правилом

$$q = A^{-1}f \quad (3.1)$$

призводить до фізично неприйнятних результатів. Це означає, що для рішення, яке одержується, порушуються деякі обмеження, які накладаються користувачем.

Ці обмеження формально виражаються у вимозі виконання умови $q \in Q$, де Q – множина, що задається апріорними обмеженнями, до числа яких ставляться типові для багатьох фізичних задач умови гладкості шуканого рішення, його невід'ємності, обмеженості зверху і знизу заданими константами і т. п. З цієї точки зору для некоректних задач більш привабливим у порівнянні з (3.1) є пошук рішення в результаті мінімізації функціонала

$$T(q) = \|Aq - f\|^2 \rightarrow \min, \quad (3.2)$$

оскільки при цьому можливо модифікувати цільової функціонал, додавши в нього такий доданок (штраф), який запобігатиме вихід рішення за рамки множини Q .

У дисертації для аналізу експериментальних даних в методах дослідження мікроструктури запропоновано наступний загальний підхід. Визначимо два позитивних функціоналу T і R , перший з яких вимірює згоду між пророкуванням моделі та експериментальними даними (функціонал (3.2)), а другий – штраф внаслідок виходу рішення за межі множини Q (наприклад, порушення "гладкості" рішення). Мінімізація тільки функціоналу T приводить до доброї згоди між теоретичним і експериментальним сигналами, але виходить нестійке рішення. В іншому граничному випадку мінімізація тільки R дає гладке рішення, яке не має нічого спільного з експериментальними даними. Тому потрібно мінімізувати їх зважену суму – так званий функціонал $T + \alpha R$, який згладжує.

У конкретному методі аналізу функціонал T визначається теоретичною моделлю, що описує взаємодію падаючого випромінювання з об'єктом дослідження. Доданок T повинно здаватися в явному вигляді, оскільки воно вимірює згоду між пророкуванням моделі та експериментальними даними, а саме в модель дослідник закладає тип і характеристики структурного елемента, що розшукується. Вид функціоналу R залежить від методу аналізу, проте у кожному разі одна з основних проблем полягає у правильній оцінці відносної ваги доданків T і R , який задається узагальненим параметром регуляризації α . У методах аналізу, які розглянути у дисертації, пропонуються різні способи вибору цього параметра. Зауважимо, що ця проблема є однією з центральних при вирішенні найрізноманітніших некоректних задач.

Таким чином, запропонований підхід складається з ряду етапів. На першому з них для конкретного методу аналізу вивчається зв'язок характеристик досліджуваного структурного елемента з експериментальним сигналом, тобто вирішується пряма задача. На другому етапі конкретизуються апріорні обмеження, що накладаються на характеристики структурного елемента. І, нарешті, на третьому етапі задається процедура визначення узагальненого параметра регуляризації.

У розділах 3 і 4 цей підхід застосовано в ряді методів дослідження складових атомного рівня. Природним вибором первинних частинок в цьому випадку є прискорені іони, які подібні складовим атомного рівня – різним іонам, що формує кристалічну структуру. Як наслідок, і домінуюче взаємодія між падаючої частинкою і структурними складовими зразка обмежена переважно цим рівнем.

У методі NRA, структурним елементом є конкретний ізотоп (окремий дефект мікрорівня), і якщо концентрація досліджуваного ізотопу невелика, то зв'язок розподілу структурного елементу – концентрації домішки $c(x)$, – з експериментальним сигналом – виходом резонансної реакції, – формалізується у вигляді:

$$IK \int_a^b c(x)q(x, E_i)dx = Y(E_i), \quad (3.3)$$

де I – струм пучка, K – постійна для даних умов експерименту величина, що включає в себе тілесний кут детектуючої системи, її ефективність і т.п. Інтегрування проводиться по всьому інтервалу $[a, b]$ розподілу досліджуваної домішки в зразку.

З формальної точки зору (3.3) є лінійне інтегральне рівняння Фредгольма першого роду, в якому ядро $q(x, E_i)$ – є ймовірність збудження іоном розглянутої ядерної реакції на глибині x . У додатку А наведено ряд конкретних прикладів, які демонструють, що для рівняння (3.3) може порушуватися будь-яке з умов коректності: існування рішення, його єдиність і безперервність. Була розроблена схема розрахунку ядра рівняння (3.3), в якій враховувалися: енергетичний розкид вихідного пучка іонів, страгглінг енергетичних втрат, ширина і форма резонансу, а також ефект Допплера. Тестування схеми проводилося на прикладі шаруватої мішені Ta_2O_5 .

Оскільки в методі NRA вдається визначити явний вигляд функціонала T , то доцільно і функціонал R також вибрати в явному вигляді – у формі тихонівського стабілізатора. В результаті рішення рівняння виходу в методі NRA зводиться до мінімізації функціоналу, який згладжує і в якому параметр регуляризації може бути визначений за допомогою одного з існуючих нині методів. У дисертації для цієї мети використовувався узагальнений принцип нев'язки. Обговорюється питання про вибір форми тихонівського стабілізатора, а також схема мінімізації функціоналу, який згладжує, що ґрунтувалася на методі кінцевих різниць. Проаналізовано використовувані алгоритми і розроблено необхідне програмне забезпечення.

Тестування процедури розв'язання рівняння виходу проводилося на прикладі модельної структури – матриці Mo із заданим розподілом домішки Ag . Робиться висновок про адекватність розробленої схеми та принципової важливості врахування некоректного характеру рівняння виходу.

Запропонована схема потім використовувалася для обробки даних натурних експериментів. Розглядалися експерименти по імплантації зразків Mo іонами Ag з енергією імплантації 3 і 10 кеВ, відповідно, а також експерименти по вивченню лазерно-стимульованої дифузії кисню в кремнії. При цьому використовувалися реакції $^{40}Ar(p, \gamma)^{41}K$ і $^{16}O(\alpha, \alpha)^{16}O$, відповідно; відновлені, а потім інтерпретовані профілі розподілу, що розшуковуються.

Далі запропонований у дисертації підхід було використано для обробки даних вимірювань в методі PIXE. У цьому методі структурним елементом є атом хімічного елемента, а вторинне випромінювання – характеристичне рентгенівське випромінювання, що виникає при взаємодії іонного пучка з електронною підсистемою атома. Оскільки рівні енергії, між якими можливий перехід, є характерними для кожного елемента, то таким же є і відповідне випромінювання. Це відкриває можливість ідентифікації всіх атомів, що входять до складу зразка, а вимір інтенсивності вкладів, що пов'язані з даним атомом, – відносних концентрацій цих елементів.

Складність рішення даної задачі пов'язана з тим, що кожен присутній хімічний елемент вносить до спектру безліч ліній. Ці лінії, будучи приблизно гауссовими за формою, зміщені один до одного, можуть взаємно перекриватися і в цілому формують корисний сигнал. Цей сигнал накладається на безперервний фон, що виникає внаслідок випромінювання з гальмівних процесів і ядерних реакцій. Крім того, імовірнісна природа взаємодії іонів з речовиною і характер процесів реєстрації рентгенівських γ -квантів, призводить до появи в спектрі статистичного шуму.

В результаті типовий PIXE-спектр містить три компоненти, що сильно відрізняються по масштабах: фон, корисний сигнал і шум (рис.5). Процедура розшифровки передбачає виділення інформативних компонент експериментального спектру. Це приводить до необхідності придушення шуму, усунення фону і розділення ліній, які перекриваються. Для цього використовують різні модельні вирази, що описують неперервний фон, і широко застосовують процедури фільтрації і згладжування.

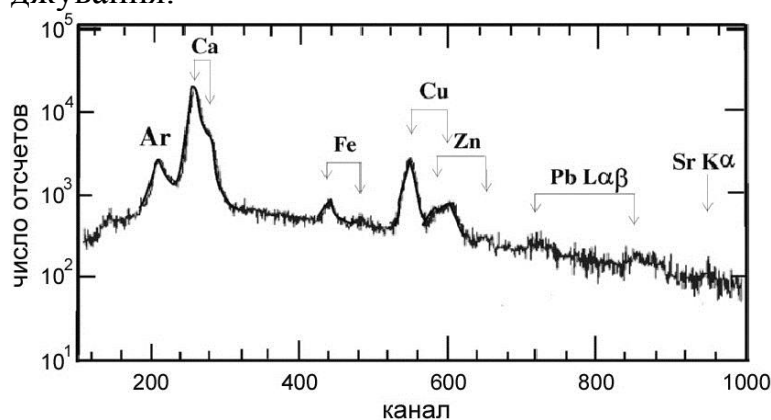


Рис.5. Типовий PIXE-спектр людської зубної тканини [50]

У дисертації показано, що ці задачі можуть бути ефективно вирішені в рамках єдиного підходу, заснованого на вейвлет-аналізі. У цьому методі розкладання функції відбувається по базису, який одержується в результаті перенесень і розтягувань ма-

теринського вейвлета. Ця особливість вейвлет-аналізу і пояснює його перспективність при обробці сигналів, що містять настільки різномасштабні складові, як в PIXE-спектрі на рис.5.

Наприклад, в основі застосування вейвлет-аналізу до задачі придушення шумів лежить той факт, що найбільш важливі характеристики регулярного сигналу локалізовані в невеликому числі вейвлет-амплітуд. Навпаки, вейвлет-перетворення білого шуму дасть в результаті також білий шум. Це означає, що якщо для вихідного спектра регулярна складова і шум відмінні від нуля у всіх N каналах, то вейвлет-амплітуди регулярного сигналу відмінні від нуля лише для порівняно невеликого числа дискретних значень масштаб-зсув, в той час як вейвлет-амплітуди шуму як і раніше відмінні від нуля для всіх N розглянутих дискретних значень масштаб-зсув і мають порівняно невелику амплітуду.

У дисертації запропоновано загальну схему придушення шуму: 1) проводиться вейвлет-перетворення вихідного сигналу; 2) задається поріг δ , і всі вейвлет-амплітуди, які по абсолютній величині менше δ , вважаються рівними нулю; 3) проводиться зворотне вейвлет-перетворення.

Показано, що застосування цієї процедури призводить до згладженого вихідного сигналу. При цьому проте виникає проблема вибору оптимального порогу. Дійсно, для нульового значення δ ніякого придушення шуму не відбувається. У міру поступового збільшення δ реконструйований сигнал стає все більш гладким, тобто наближається до детермінованої компоненті. Проте, якщо вибрати значення

δ занадто великим, то, поряд з придушенням шуму, спотворюються вейвлет-амплітуди регулярної частини сигналу, тобто реконструйований сигнал віддаляється від шуканої компоненти. Таким чином, δ грає роль параметра регуляризації.

У дисертації показано, що оптимальне значення δ відповідає мінімуму функції узагальненої перехресної перевірки достовірності $GCV(\delta)$, яка залежить лише від початкового сигналу. На підставі запропонованої процедури було розроблено програмне забезпечення для придушення шуму в РІХЕ-спектрах. Крім того, показано, як використовуючи певну свободу у виборі материнського вейвлета можна видалити з експериментального спектра великомасштабні поліноміальні складові, що формують безперервний фон, а також, як на основі аналізу скелетона вейвлет-перетворення розділити інформативні компоненти РІХЕ-спектра, які перекриваються.

У **четвертому розділі** «Ідентифікація атомної структури твердих тіл у методі резерфордівського зворотного розсіювання» запропонований підхід був використаний для обробки даних вимірювань в методі RBS. У цьому методі структурними елементами є атоми, що входять до складу приповерхневої області. Експериментальний сигнал є суперпозицією вкладів в енергетичний спектр первинних іонів, розсіяних на всіх елементах, а метою аналізу є визначення для кожного з елементів профілю розподілу по глибині.

Відповідно до загального підходу спочатку розглянута пряма задача розсіювання, а потім запропонована нова процедура рішення рівняння виходу в методі RBS, в якій спочатку враховувався некоректний характер задачі. При цьому особлива увага зверталася на проблеми, які виникають при переході від неперервних функціональних просторів до дискретних сіткових, зокрема, при визначенні виду сітки по глибині мішені. Наявність таких проблем давно визнавалося фахівцями, пов'язаними з обробкою спектрів RBS.

В результаті в літературі було розроблено декілька феноменологічних схем. Так, було виявлено, що точна підгонка теоретичного спектра до даних експерименту призводить до концентраційних профілів з різкими осциляціями. Щоб уникнути появи подібних осциляцій, в одній зі схем цільова функція модифікувалася шляхом введення в неї співмножника, який монотонно зростає при збільшенні числа субслоїв. Передбачалося, що така модифікація перешкоджає появі великої кількості дуже тонких субслоїв. Очевидно, що перехід до більш великомасштабної шкали на осі глибин еквівалентний локальному усередненню нестабільного профілю і неминуче призводить до його згладжування. Така схема – це, по суті, модифікація функціоналу (3.2), в якій робиться спроба врахувати апріорні вимоги гладкості шуканого рішення, що збігається із загальним підходом, запропонованим в дисертації. Недоліком схеми є те, що в ній не була обґрунтована сама процедура завдання сітки на осі глибин.

У запропонованому в дисертації підході враховано, що енергетичний розподіл пучка змінюється з глибиною, і з двох змінних "енергія (E) – глибина (x)" дискретизація може незалежно відбуватися лише для першої з них, оскільки на поверхні мішені вона визначається настройками багатоканального аналізатора. При цьому тільки для $x = 0$ ширини всіх каналів однакові і рівні ΔE_1 .

Введено уявлення про проекції вглиб мішені шкали аналізатора і показано, що

сітка на осі енергій однозначно визначає нерівномірні і різні для різних компонент сітки на осі глибин. Це твердження представляє частину розробленої процедури розв'язання рівняння виходу. При цьому сукупність дискретних сіток на осі глибин грає роль узагальненого параметра регуляризації.

Уявлення про проекції шкали аналізатора безпосередньо використовувалося у процедурі рішення рівняння виходу в методі RBS. Ця процедура має ряд спільних рис з традиційним підходом, але в деяких відносинах істотно відрізняється від нього. Проаналізовано, в чому полягають ці відмінності при визначенні залежності енергії іона від глибини, товщини субслоя мішені і завданні рівняння виходу. Робиться висновок, що вирішення цих питань в традиційному підході містить систематичну похибку і тому є менш точним, ніж у пропонованій процедурі.

У **п'ятому розділі** «Ідентифікація вакансійних дефектів мезоуровня в рамках спектроскопії часу життя позитронів» запропонований підхід був використаний для інтерпретації даних вимірювань в методі PALS. У ньому первинною частинкою є позитрон, генерований в джерелі, а вторинною – гамма-квант, що утворюється при анігіляції електрон-позитронної пари.

Окремий експеримент полягає у вимірюванні швидкості рахунку запізнілих збігів між сигналом народження позитрона (наприклад, ядерним γ -квантом з енергією 1.274 MeV) і сигналом смерті позитрона (як правило, анігіляційним γ -квантом 0.511 MeV). Інтервал між цими сигналами визначає час життя окремого позитрона. Ця величина є випадковою, і як усяка випадкова величина, повинна описуватися функцією розподілу.

Структурними елементами в методі PALS є дефектні утворювання вакансійного типу, що відносяться до мезоуровня. Оскільки час життя позитрона залежить від типу утворювання, то вимірюваний спектр буде в загальному випадку представляти суперпозицію окремих функцій розподілу. Задача обробки спектра полягає в його очищенні від шуму і декомпозиції – у визначенні середнього часу життя позитрона для кожного дефекту і оцінці відносної концентрації різних дефектів.

Відповідно до загального підходу спочатку розглянута пряма задача. Розроблена феноменологічна теорія, яка визначає математичну форму спектра часу життя позитронів. Для m різних типів позитрон-чутливих дефектів одержано наступний вираз для вимірюваного в експерименті сигналу:

$$s(t) = \sum_{j=1}^{m+1} \frac{I_j}{\tau_j} \exp\left(-\frac{t}{\tau_j}\right). \quad (5.1)$$

При цьому мода $j = 1$ відповідає позитронам, які анігілюють в бездефектній області кристала, а m останніх мод – позитронам, що попередньо локалізовані на позитрон-чутливих дефектах.

З (5.1) випливає, що розподіл часу життя представляє суперпозицію однако-вих розподілів, кожне з яких повністю описується середнім значенням або середнім часом життя позитрона τ_j в стані j . Задача аналізу експериментальних даних полягає у визначенні сукупності параметрів $\{I_j, \tau_j\}$ для $j = 1, \dots, m+1$. Показано, що для дефектних мод τ_j залежить тільки від типу дефекту, а для $j = 2, \dots, m+1$ вагової множник $I_j \sim C_j$, де C_j концентрація дефектів типу j . Тобто в результаті успішного аналізу можна визначити як тип, так і відносну поширеність у зразку

дефектів.

Запропоновано новий підхід до розв'язання оберненої задачі в методі PALS, в якому враховувався її некоректний характер, тобто враховувалося, що спектр містить не тільки корисний сигнал, але і шум. Якщо $s[1], s[2], \dots, s[N]$ – вибіркові значення, взяті в точках $t = 0, \Delta, \dots, (N - 1)\Delta$, то для оцінки спектра використовувалася загальна p -членна модель комплексних експонент. Кожна експонента характеризується амплітудою, коефіцієнтом загасання, частотою і початковою фазою, причому значення всіх параметрів повністю довільні. Тому модель може містити як чисто затухаючі експоненти, відповідні окремим розподілом в (5.1), так і високочастотні незгасаючі синусоїди, що відповідають шумовий складової спектра. Відповідно, порядок моделі p в загальному випадку буде більше числа мод анігіляції в спектрі (5.1).

При наявності N відліків даних суму квадратів помилок потрібно мінімізувати як за кількістю експонент, так і за всіма характеристиками кожної з них. Відомо, що це виявляється важкою нелінійною задачею навіть у випадку, коли число експонент задано. Стандартний спосіб розв'язання задачі полягає у використанні ітераційних алгоритмів багатовимірної мінімізації, і саме він лежить в основі більшості існуючих нині програм обробки спектрів часу життя позитронів.

Проте для експоненціальної апроксимації розроблена група спеціальних процедур, яка поєднується загальною назвою – метод найменших квадратів Проні. Особливість цих процедур полягає в тому, що вони не є ітераційними і зводять нелінійні аспекти експоненціальної моделі до задачі факторизації поліномів, для вирішення якої розроблені швидкі обчислювальні алгоритми. Два цих обставини пояснюють, чому метод Проні був використаний у дисертації в якості основи при розробці ефективної схеми інтерпретації спектрів часу життя позитронів.

Особливістю цієї схеми є те, що пробна функція представляється у вигляді розкладання по базису, в якому ефективно описуються як детерміністична, так і випадкова складові сигналу. При цьому залежно від параметрів функцій вони можуть бути розділені на два непересічних підмножини, що формують ці складові. Дана обставина дає можливість провести декомпозицію експериментального сигналу, при якій не відбувається спотворення детерміністичної складової. У традиційному підході очищення сигналу від випадкового шуму досягається за рахунок низькочастотної фільтрації, при якій неминуче спотворюється корисна складові сигналу. Це може призводити до зміщення оцінок параметрів корисних компонент.

Для даної довжини розкладання p метод Проні самостійно визначає потужності відповідних підмножин і параметри кожної з пробних функцій в межах кожної підмножини. Більше того, він надає можливість декомпозиції спектра. У дисертації показано, що для цього потрібно визначити такий підінтервал p , для якого число корисних членів в розкладанні і їх характеристики залишаються практично незмінними. До корисних відносяться члени, що задовольняють умовам: 1) вони є дійсними і такими, що убивають, тобто збігаються за формою з функціями в (5.1), що передбачала теорія; 2) мають енергію, більшу деякого значення; 3) у сукупності формують нормовану функцію розподілу.

Таким чином, розглянутий підінтервал зміни p в цілому характеризується постійним числом корисних членів розкладання і практично незмінними характерис-

тиками кожного з цих членів. Визначення подібного підінтервалу можна трактувати як завдання пошуку узагальненого параметра регуляризації, для якого досягається оптимальний баланс між функціоналами T і R , тобто оптимальним чином описується як корисний сигнал, так і шум.

Проаналізовано використувані алгоритми і на основі розробленої схеми написана програма Q_fit обробки спектрів часу життя позитронів. Її тестування проводилося для декількох серій модельних спектрів. Подібний підхід використовувався і раніше в літературі. Більше того, щоб мати можливість порівняння характеристик різних програм, для тестування використовувалася ті ж спектри, що і в [51]. Робиться загальний висновок про більш високі характеристики запропонованого підходу в порівнянні з існуючими в літературі.

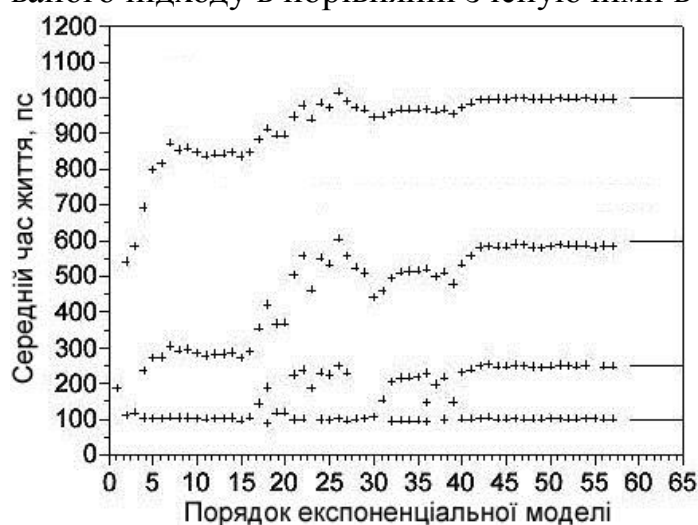


Рис.6. Середній час життя членів експоненціальної моделі, які задовольняють основним умовам, для одного конкретного спектру серії Г

Однією з найскладніших є серія Г: 4 компоненти $\tau_1 = 100$ пс, $\tau_2 = 250$ пс, $\tau_3 = 600$ пс, $\tau_4 = 1000$ пс; $I_1 = I_2 = I_3 = I_4 = 25\%$; 128 каналів; використовується калібрування 58 пс/канал; 20×10^6 відліків в окремому спектрі; 10 спектрів у серії. На рис.6 для одного спектра серії Г проілюстрована

процедуру визначення в розробленому підході числа позитрон-чутливих дефектів, і для кожного з них – середнього часу життя позитрона. Видно, що весь інтервал зміни p можна розділити на три підінтервали: 1) $8 \leq p \leq 15$; 2) $32 \leq p \leq 35$; 3) $42 \leq p \leq 57$, в яких параметри убуючих дійсних експонент з незначуючою енергією залишаються приблизно постійними. Ці підінтервали розділені перехідними областями. Перший підінтервал відповідає трикомпонентній моделі, другий – чотирьом компонентам зі зміщеними оцінками, а третій – чотирикомпонентній моделі з незміщеними оцінками. Таким чином, чим точніше описується шум, тим надійніше відбувається декомпозиція спектра.

Підкреслимо, що розроблена схема вирішує задачу обробки експериментальних даних в спектрометрії PALS, але не їх інтерпретації. Для подібної інтерпретації необхідно встановити зв'язок між середнім часом життя позитрона і характеристиками дефектного утворювання вакансійного типу. У разі пор один з варіантів може складатися у використанні моделі Tao-Eldrup, запропонованої на початку 1980-х років, а згодом модифікованої так, щоб враховувати одночасно як мікро-, так і мезопори.

У цій моделі розглядаються тільки сферично симетричні пори. При цьому о-Рs описується як скалярна частинка з масою, рівною подвоєною масі електрона. Ця частинка знаходиться в основному стані в сферичній потенційній ямі. Зменшення часу життя о-Рs пов'язано з ефектом захоплення позитрона електроном на поверхні пори. Подальший розвиток моделі Tao-Eldrup стикається з суттєвими проблемами, одна з яких полягає в необхідності розглядати пори реалістичної форми. Основи

для розгляду подібних проблем закладені в шостому розділі дисертації.

У шостому розділі «Вимірювання в комп'ютерних експериментах інтегральних характеристик компактних атомних утворень» запропоновано оригінальний варіант обміну інформацією між суміжними рівнями в послідовних схемах БКМ. Розглядалося поодинокий випадок, коли на початковому рівні відбувається моделювання динамічної еволюції систем класичних частинок. При цьому у вузлах тимчасової сітки послідовно генеруються координати і імпульси окремих частинок. Проте у дослідника відсутнє уявлення про колективні моди системи, які могли б послужити основою для визначення її характеристик на мезо- та макрорівнях. Найважливішою такою характеристикою системи частинок є поверхня компактного утворення. Звідси випливає необхідність мікроскопічного визначення при атомістичному моделюванні цієї макроскопічної концепції.

У задачі опису поверхні атомного кластера є дві складові: 1) необхідний алгоритм, який виявляє чи є даний атом частиною поверхні чи ні; 2) потрібно забезпечити ідентифікацію поверхні як єдиної зв'язної сутності в термінах розміру, положення та форми. У дисертації для вирішення даної задачі використовувався загальний підхід, заснований на уявленні про котінні по поверхні пробної сфери.

Нехай $\partial\Omega$ – гладка поверхня, що обмежує замкнену область Ω . Для довільного положення центру пробної сфери радіуса R_s переріз її поверхні та області Ω може бути порожнім, містити одну точку або континуум точок. Показано, що в першому випадку сфера перебуває цілком поза області Ω , у другому – дотикається $\partial\Omega$ в єдиній точці, в третьому – містить внутрішні точки Ω . Отже, поверхню можна представити у вигляді об'єднання одноточкових множин, для кожного з яких існує взаємно-однозначна відповідність між точкою $\partial\Omega$ і положенням центру пробної сфери.

Таким чином, задача зводиться до розгляду всіх положень пробної сфери, яка котиться по поверхні. Для чисельного опису гладкої поверхні її потрібно розбити на сукупність полігонів простої форми, таких, що кожен з них представляє алгебраїчну поверхню малої ступені. При цьому існує проблема вибору розміру, форми, орієнтації окремих полігонів і гладкого зшивання їх в єдине ціле. Якщо ж поверхня визначається кінцевим числом атомів, і кожен атом є сферою радіуса R_a , то континуум \mathbf{S} положень пробної сфери можна представити у вигляді $\mathbf{S} = \mathbf{S}_1 \supset \mathbf{S}_2 \supset \mathbf{S}_3 \supset \dots$ де \mathbf{S}_i – множина положень сфери, в яких вона торкається одночасно і атомів поверхні. Множині \mathbf{S}_1 і \mathbf{S}_2 мають потужність континууму, а множина \mathbf{S}_3 – кінцева, і ця обставина було використано для дискретизації поверхні кластера.

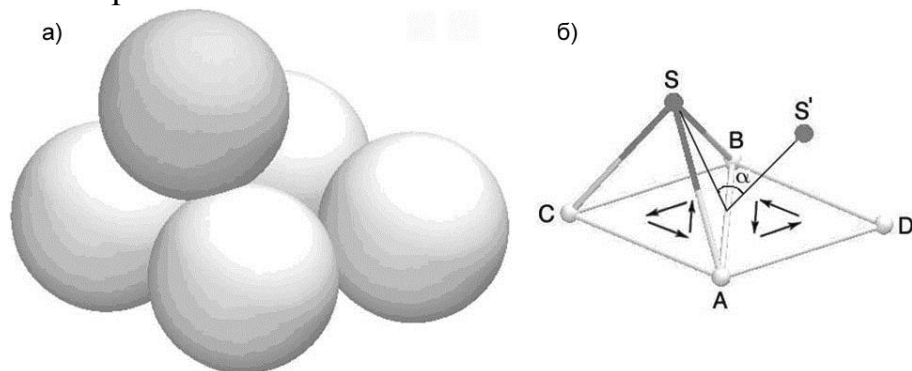


Рис.7. Фіксоване положення пробної сфери (затемнена) з центром у точці S , при якому вона одночасно торкається трьох атомів A , B і C поверхні (а) та ілюстрація переходу від даного до наступного фіксованого положення пробної сфери (б)

Відповідно до цього фіксоване положення пробної сфери визначалося як таке, при якому вона одночасно контактує з трьома (а в загальному випадку – і більш, ніж з трьома) атомами і не перекривається з жодним іншим атомом (рис.7, а). З динамічної точки зору сфера не може котитися далі без втрати контакту, принаймні, з одним з атомів. Центри атомів формують вершини трикутника – елементу r -редукованої поверхні.

Якщо перший елемент задано, то наступний можна визначити, перекочуючи пробну сферу через будь-яке з ребер елементу так, щоб вона зберігала контакт з двома атомами з трьох (на рис.7, б – з атомами А і В), поки сфера не торкнеться третього атома наступного елемента поверхні – атома D. При цьому важливо, що будь-яке з ребер r -редукованої поверхні є загальним ребром двох суміжних трикутних елементів. Таким чином, атомний характер системи приводить до природної дискретизації r -редукованої поверхні, а послідовне перекочування пробної сфери через недосліджені ребра забезпечує зв'язування трикутних елементів в єдине ціле. У результаті, якщо повне число трикутних елементів дорівнює N , то поверхня кластера апроксимується поліедром

$$\Sigma = \bigcup_{i=1}^N \Delta A_i B_i C_i = \bigcup_{i=1}^N S_i. \quad (6.1)$$

На першому кроці розглядалося компактне атомне утворення, координати окремих частинок якого передбачалися відомими. Пробна сфера розміщувалася поза кластером і задавалося напрямком її руху до кластеру. З використанням алгоритмів методу EDMD (розроблених в розділі 2 дисертації) відшукувався найближчий атом на шляху пробної сфери та перевірялося, чи може він визначити перше фіксоване положення r -редукованої поверхні. Результатом є вибір трьох атомів поверхні кластера – атомів А, В і С на рис.7.

У дисертації описано ефективний метод обчислення координат центру мас пробної сфери у фіксованому положенні і визначення наступного трикутного елемента, який виходить в результаті перекочування сфери через одну з необроблених сторін ΔABC (сторону АВ на рис.7). Формування поверхні закінчувалося, коли в списку у всіх знайдених трикутних елементів були відсутні необроблені сторони.

Після визначення поверхні кластера розраховувалися його найпростіші інтегральні характеристики – площа та об'єм. Площа всієї поверхні уявлялася у вигляді суми площ окремих полігонів, а обсяг кластера – у вигляді суми по всіх елементах обсягів пірамід з основою у вигляді цього елемента і вершиною, розташованою в довільній фіксованій точці, в якості якої в розрахунках вибирався центр мас кластеру.

Для реалізації запропонованого методу було розроблено необхідне програмне забезпечення і на прикладі модельного кластера виконано його тестування. Кластер представляв фрагмент ГЦК-структури з параметром решітки a , що містить 63 атома, в якому атоми випадково зміщувалися з вузлів решітки. У розрахунках варіювалася амплітуда зміщення Δ , що задається в частках a .

Для кожного значення Δ по вибірці з 10 кластерів розраховувалися середнє значення і стандартне відхилення для площі поверхні та об'єму. Обидві величини вимірювалися в частках від відповідних значень S_0 і V_0 для впорядкованого кластера з $\Delta = 0$. Останні величини легко розрахувати аналітично. Було одержано, що

при $\Delta \rightarrow 0$ як площа поверхні кластера, так і його об'єм прямують відповідно до S_0 і V_0 , що є одним з критеріїв коректності розробленого програмного забезпечення.

При збільшенні амплітуди випадкових зсувів атомів кластера Δ зростає розкид значень як S , так і V , але їх середні значення по-різному залежать від Δ – середнє значення площі поверхні кластера монотонно зростає при збільшенні Δ , проте середнє значення об'єму практично не змінюється. Настільки різну поведінку цих величин пов'язано з тим, що випадковий зсув атома поверхні як всередину, так і назовні кластера приводить до утворення "гофрованої" поверхні і до збільшення її площі. У той же час обсяг кластера збільшується тільки при зміщенні атома поверхні назовні, в іншому випадку обсяг кластера зменшується. Ці протилежні за знаком відхилення від значення V_0 в середньому компенсують один одного. Підкреслимо, що такі якісні відмінності в поведінці оцінок площі та об'єму компактних атомних утворень потрібно обов'язково враховувати при інтерпретації даних комп'ютерних експериментів.

Після визначення атомів зовнішньої поверхні кластера була поставлена і вирішена задача вимірювання в комп'ютерному експерименті його довільної інтегральної характеристики. Для визначеності розглядалися такі характеристики S , які можна представити у вигляді інтеграла від деякої функції $f(\mathbf{r})$. У цьому випадку задача зводиться до визначення області інтегрування і розробці процедури обчислення інтеграла від довільної функції по цій області.

У запропонованому методі компактний атомний кластер апроксимується поліедром Ω з зовнішньої границею Σ (6.1), що складена з окремих трикутних полігонів, для кожного з яких можна визначити нормований вектор зовнішньої нормалі \mathbf{n} . Оскільки передбачалося що: 1) поліедр Ω може мати довільну форму; 2) функція $f(\mathbf{r})$ делокалізована; 3) сама процедура апроксимації компактного атомного утворення поліедром Ω є наближенням, то в разі довільної функції $f(\mathbf{r})$ в якості процедури обчислення інтеграла використовувався універсальний наближений метод МК.

Для подолання труднощів, пов'язаних з генеруванням по області Ω складної форми рівномірно розподілених випадкових точок, в дисертації вводилася область простої форми Ω_{\square} така, що $\Omega \subset \Omega_{\square}$, і по Ω_{\square} інтегрувалася функція, рівна вихідної для точок всередині Ω , і нулю в протилежному випадку. В якості Ω_{\square} використовувався прямокутний паралелепіпед, межі якого були рівні екстремальним значенням відповідних координат атомів поверхні. З цього паралелепіпеда інтегрувалася функція $f(\mathbf{r})D(\mathbf{r})$, де $D(\mathbf{r})$ – індикаторна функція поліедра, що дорівнює одиниці для $\mathbf{r} \in \Omega$ і нулю для $\mathbf{r} \notin \Omega$.

У дисертації запропоновано загальний метод обчислення значення індикаторної функції $D(\mathbf{r})$ в довільній точці \mathbf{r} . Для цього розглядалася допоміжна сфера, яка розширювалася з точки \mathbf{r} , і визначалася точка \mathbf{p} , в якій ця сфера вперше торкнеться межі Σ поліедра Ω . Порівнюючи напрямок $\mathbf{n}(\mathbf{p})$ зовнішньої нормалі до Σ в точці \mathbf{p} з вектором $\mathbf{p} - \mathbf{r}$, можна встановити, чи наближається сфера до Σ зсередини або ззовні, тобто чи лежить пробна точка \mathbf{r} всередині або зовні Ω . Окремо розглядалося випадок, коли в точці \mathbf{p} немає однозначно визначеного вектору $\mathbf{n}(\mathbf{p})$ (ребро двох

суміжних трикутних елементів Σ або вершина Σ , в якій сходяться кілька елементів).

В рамках запропонованого підходу можна наближено розрахувати довільну інтегральну характеристику компактного атомного утворення. Проте для деяких характеристик в дисертації вперше одержані точні аналітичні вирази. До числа найважливіших подібних характеристик відносяться геометричні моменти $C = m_{pqr}$, для яких $f(\mathbf{r}) = x^p y^q z^r$, (p, q, r) – трійка невід'ємних цілих чисел, а $p + q + r$ – порядок моменту.

Особливе значення геометричних моментів довільного об'єкта пов'язано з тим, що на їх основі можна чисельно охарактеризувати його форму, тобто ту геометричну інформацію, яка залишається після відділення від об'єкта всього, що пов'язано з можливими змінами його масштабу, переміщеннями і поворотами в просторі. Щоб задовольнити інваріантності щодо переміщень, досить перейти до центральних моментів, для яких $f(\mathbf{r}) = (x-x_c)^p (y-y_c)^q (z-z_c)^r$ і (x_c, y_c, z_c) – вектор центру мас. Настільки ж просто досягається і масштабна інваріантність в результаті ізометричного масштабування центральних моментів.

Теорія груп дає змогу досягти інваріантності щодо поворотів. Один з варіантів полягає у використанні інваріантів моментів другого порядку:

$$\begin{aligned} O_1 &= M_{200} + M_{020} + M_{002}, \\ O_2 &= M_{200}M_{020} + M_{200}M_{002} + M_{020}M_{002} - M_{110}^2 - M_{101}^2 - M_{011}^2, \\ O_3 &= M_{200}M_{020}M_{002} + 2M_{110}M_{101}M_{011} - M_{200}M_{011}^2 - M_{020}M_{101}^2 - M_{002}M_{110}^2. \end{aligned} \quad (6.2)$$

У дисертації в якості дескриптора форми використовувався характеристичний вектор з трьома компонентами, одержуваними на основі інваріантів (O_1, O_2, O_3) . Для деяких тривимірних об'єктів (тетраedr, куб, октаedr, еліпсоїд, сфера, тощо) можна одержати точні вирази для компонент вектору форми. Найбільше значення всі компоненти мають для сфери. Тому останній крок полягав у введенні нормованих компонент, які змінюються в інтервалі від 0 до 1.

Для обчислення компонент вектору форми компактного атомного утворення можна використовувати запропонований раніше підхід, проте особлива форма області інтегрування – поліedr, – обмежений поверхнею (6.1), і вид підінтегральної функції дозволили вперше одержати точні аналітичні вирази для геометричних моментів. В основі запропонованої в дисертації схеми лежить теорема Остроградського-Гаусса, згідно з якою обчислення об'ємного інтеграла від скалярного поля $f(\mathbf{r})$ можна звести до обчислення потоку через межу цього обсягу векторного поля $\mathbf{F}(\mathbf{r})$, такого що $\text{div} \mathbf{F}(\mathbf{r}) = f(\mathbf{r})$. Для $f(\mathbf{r}) = x^p y^q z^r$

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}) = \frac{x^p y^q z^r}{3} \left(\frac{x}{p+1}, \frac{y}{q+1}, \frac{z}{r+1} \right). \quad (6.3)$$

Використання теореми Остроградського-Гаусса, формули бінома Ньютона і природних координат дало можливість одержати точний вираз для внеску в момент від потоку поля $\mathbf{F}(\mathbf{r})$ через i -й полігон. Повний момент є сумою вкладів від усіх полігонів.

Сьомий розділ «Застосування методу вимірювання кластерних характеристик в нанofізичі і комп'ютерному матеріалознавстві» містить кілька прикладів застосування методу, розробленого в розділі 6. Оскільки обов'язковою інтегральною

характеристикою атомного утворення є його форма, то розгляд було обмежено вивченням еволюції форми таких утворень при зміні тих чи інших умов.

Як перший приклад розглядалися самопідтримні атомні кластери, які знаходяться в центрі уваги сучасної нанофізики, що пояснюється як фундаментальними, так і прикладними причинами. Найхарактернішою рисою кластерів є сильна залежність властивостей від числа n атомів, зокрема нерегулярна поведінка в немасштабному діапазоні розмірів. Часто це є наслідком прояву оболонкових ефектів квантової або класичної природи. Наприклад, діелектричні кластери з парною взаємодією мають оболонкову структуру, і заповнення чергової оболонки відбувається при магічному числі атомів. Кластери з магічним числом атомів характеризуються максимумами таких властивостей, як енергія зв'язку атомів, потенціал іонізації, спорідненість до електрона і так далі в залежності від n .

Для кластерів, міжчасткова взаємодія в яких описується потенціалом Леннарда-Джонса (ЛД), при збільшенні n відбувається формування і заповнення ікосаедричних оболонок, кожна з яких складається з 20 правильних трикутників. Такі оболонки відповідають послідовності магічних чисел: $n = 13, 55, 147, 309$ для порядку оболонки $z = 1, 2, 3, 4$.

На жаль, в даний час жоден з методів оптимізації не може бути використаний для гарантованого знаходження глобального мінімуму потенціальної енергії кластера, число частинок в якому перевищує кілька десятків. Тим не менш, застосування всіх методів дало змогу визначити такі мінімуми для множини ЛД-кластерів. Дані про їх атомні структури зібрані у відкритій міжнародній базі даних, яка використовувалася в даному розділі.

Розроблений в розділі 6 метод застосовувався для вимірювання форми кластерів з $4 \leq n \leq 150$. Спочатку визначалися атоми зовнішньої поверхні даного кластеру і формувався відповідний поліедр, а потім вимірювалися компоненти вектору форми. Задача полягала в тому, щоб перевірити, чи в змозі розроблений метод відтворити наявність для ЛД-кластерів осцилюючих розмірних ефектів.

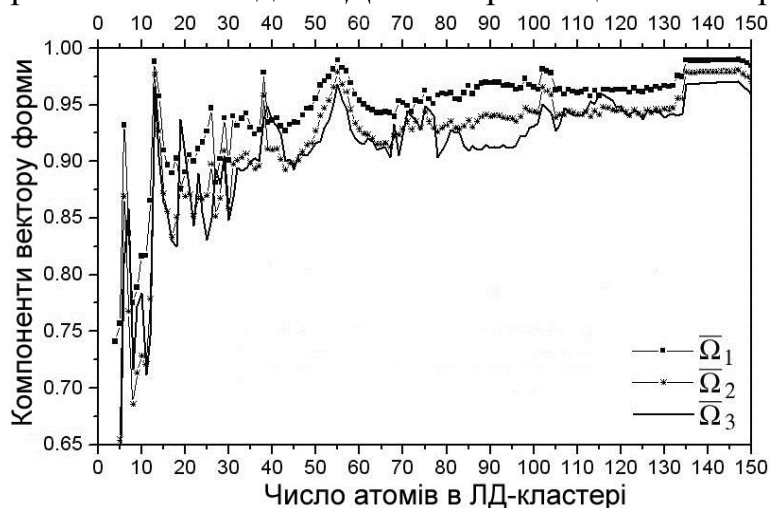


Рис.8. Залежності компонент вектору форми рівноважних ЛД-кластерів від числа частинок

Одержані залежності $\bar{\Omega}_1(n), \bar{\Omega}_2(n), \bar{\Omega}_3(n)$ наведені на рис.8. Видно, що в міру зростання числа частинок в кластері його форма все більше наближається до форми сфери, проте збіжність є немонотонною. Можна очікувати, що заповнення чергової оболонки призводить до виникнення атомного утворення – магічного кластера – з високою сферичною симетрією. На залежностях $\bar{\Omega}_1(n), \bar{\Omega}_2(n), \bar{\Omega}_3(n)$ це повинно проявлятися у вигляді локальних максимумів для всіх величин одночасно. З рис.8 видно, що дійсно при $n = 13$ і $n = 55$ спостерігаються яскраво виражені локальні максимуми, які відповідають запов-

ненню першої та другої ікосаедрічних оболонки.

На відміну від двох перших оболонок, заповнення третьої при $n = 147$ не призводить до появи локального максимуму на кривих $\bar{\Omega}_1(n), \bar{\Omega}_2(n), \bar{\Omega}_3(n)$. Тому можна стверджувати, що після заповнення третьої оболонки форма ЛД-кластера виходить на макроскопічну сферичну межу.

Як другий приклад розглядалися дефектні утворення мезорівня – пори, які часто виникають при експлуатації реакторних матеріалів. На відміну від самопідтриманих атомних кластерів в цьому випадку при моделюванні поведінки системи на атомному рівні необхідно спочатку зафіксувати сам факт виникнення такого дефекту і визначити координати складових його атомів, а потім вже вимірювати інтегральні характеристики.

У дисертації для виділення дефектного утворення використовувався метод CNA (Common Neighbor Analysis), який базується на аналізі загальних найближчих сусідів кожного атома, визначенні його кристалічності і виділенні зв'язкових підмножин, що мають однаковий тип кристалічності. Застосування CNA-методу дає можливість детектувати появу частинок, локальна кристалічність яких відрізняється від тієї, яка характерна для вихідної решітки.

Задача була в тому, щоб перевірити, чи в змозі розроблений в дисертації метод коректно відтворити зміну форми вакансійних пор при їх стисненні. З цією метою був поставлений наступний експеримент. Спочатку у вибраному фрагменті ГЦК-решітки задавалася сферична вакансійна пора певного обсягу: центр сфери поєднувався з одним з вузлів решітки, і всі атоми, центри яких потрапляють всередину сфери, віддалялися.

В результаті одержуємо модель сферичної вакансійної пори. Визначимо за допомогою CNA-методу локальну кристалічність всіх атомів у розрахунковій ячейці і розділимо їх на дві непересічних підмножини: атоми, локальна кристалічність яких відповідає досконалій решітці, і дефектні атоми. В рамках розробленого в розділі 6 методу визначалися атоми, що утворюють зовнішню межу компактного комплексу дефектів, а потім вимірювалися параметри його форми.

Для моделювання процесу схлопування пори багаторазово повторювався описаний експеримент, але тепер в початковому стані видалялися з розрахункової ячейки атоми, що лежать всередині не сфери, а рівного їй за обсягом геометричного утворення, для якого існують аналітичні вирази параметрів вектору форми. З цією метою був обраний еліпсоїд обертання. Якщо b – мала піввісь еліпсоїда, то коефіцієнт стиснення пори визначався у вигляді $\xi = 1 - b/a$. Для вихідної сферичної пори $\xi = 0$, а в межі схлопнутої пори $\xi \rightarrow 1$.

Експеримент повторювався для ряду значень коефіцієнта стиснення, і для кожного ξ вимірювалися параметри форми пори. Розрахункова ячейка вибиралася у вигляді фрагмента ГЦК-решітки розміром $15 \times 15 \times 15$ (в одиницях параметра решітки). Вимірний коефіцієнт компактності кластеру дефектних атомів для $\xi = 0$ виявився рівним 0.1207. Порівняння його з відповідним коефіцієнтом в бездефектному кристалі (0.7405) дає можливість однозначно класифікувати це дефектне утворення як вакансійну пору.

Результати експерименту показані на рис.9. Там же наведено аналітичні залежності. Як видно з рисунка існує гарна згода між аналітичними і вимірними в

комп'ютерному експерименті залежностями $\bar{\Omega}_i(\xi)$, $i = 1, 2, 3$. Спостережувані розбіжності, мабуть, пов'язані з кристалографічним огрануванням поверхонь вакансійних пор. Роль подібного огранування буде зростати у міру збільшення коефіцієнта стиснення, оскільки в межі схлопнутої пори її поверхня буде складатися в основному з двох фрагментів кристалографічних площин.

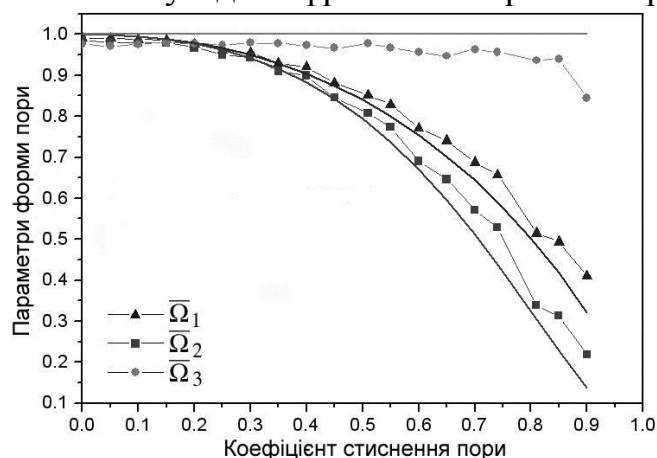


Рис.9. Залежність параметрів форми пори від коефіцієнта стиснення. Суцільні лінії – аналітичні залежності

У області, що розглядається, ще одну групу процесів, в яких важливу роль відіграє форма локальних дефектних формувань, утворюють процеси газовиділення в UO_2 таких продуктів поділу як газоподібний ксенон або криптон. Ці гази мають низьку розчинність, і тому по закінченню порівняно короткого періоду

опромінення всередині зерен утворюється велика кількість газонаповнених пор, форма яких близька до сферичної. Експериментальні дані свідчать, що ці пори мають порівняно невеликий обсяг – їх діаметр не перевищує 30 нм. У той же час по межах зерен спостерігаються лінзоподібні пори, розмір яких може досягати декількох мкм.

Пори останнього типу грають важливу роль в процесі газовиділення Хе або Kr, оскільки через велику кількість вакансій на межах можуть збільшуватися в розмірах, поки не утворюють деяку зв'язну мережу. Якщо ця мережа в ході росту досягає межі зразка, то гази всередині неї виходять в навколишній простір, під дією сил поверхневого натягу мережа схлопується, і процес газовиділення починається спочатку. Тому при комп'ютерному моделюванні подібних процесів важливо мати алгоритм, який адекватно описує зміну характеристик форми локальних дефектних утворень.

ВИСНОВКИ

У дисертації вирішена проблема комплексного опису дефектної структури твердих тіл для декількох просторово-часових масштабів і встановлення взаємних зв'язків різних дефектів в рамках інтегрованого підходу, заснованого на використанні ядерно-фізичних методів аналізу та багаторівневого комп'ютерного моделювання. В результаті виконання роботи можна сформулювати такі основні висновки:

1. Удосконалено теоретичну модель, що описує формування сигналу в методах аналізу мікроструктури з використанням пучків важких частинок. Розглянуто проблему адекватного опису вкладів в спектр частинок, які зазнали два послідовних зіткнення з атомами мішені. В рамках моделі твердих сфер поставлено кілька серій комп'ютерних експериментів, в яких виміряні енергетичні розподіли часток, які зазнали два послідовних зіткнення і ймовірності відповідних процесів. Показано, що ці величини для одно- і дворазових зіткнень якісно розрізняються, і ігнорування даного обставини є принциповим недоліком існуючих в літературі підходів.

2. Розроблено модель та одержано загальний теоретичний вираз для перерізу розсіяння на довільному центрі, що не має сферичної симетрії. В окремому випадку розсіючого центру, що складається з двох просторово розділених, сферично симетричних потенціалів запропоновано необхідний математичний формалізм і виконано його тестування.

3. Розроблено два незалежних підходи (заснованих відповідно на кутах Ейлера і на кватерніонах) для вивчення кінематичних характеристик дворазово розсіяних частинок. З використанням кватерніонів виявлено загальні закономірності процесів дворазових зіткнень. Одержано аналітичні вирази для максимальної та мінімальної енергій, які може мати частинка, розсіяна на заданий кут в результаті двох послідовних зіткнень. Показано, що для частинок з екстремальними енергіями задача розсіювання є плоскою.

4. У моделі твердих сфер досліджено вплив граничних умов на процес випадкових блукань важкої частинки в газі легких атомів. Для вивчення явищ в нескінченному середовищі запропоновані нові граничні умови (ковзаючі граничні умови) і показано, що вони призводять до фізично коректних результатів. При моделюванні випадкових блукань частинки у фіксованій розрахунковій ячійці з пружними граничними умовами виявлено нове явище – існування двох режимів блукань: тривимірних, коли частинка досить віддалена від межі, і квазідвовимірних, при яких частинка протягом деякого часу блукає вздовж межі. В останньому випадку межа утримує частинку і не дозволяє їй вийти, хоча між ними немає прямої силової взаємодії. Виміряно глибину потенційної ями, в яку потрапляє частинка поблизу межі, і запропоновано теоретичне пояснення природи цієї ями. Виявлене явище може мати велике значення при вивченні процесів десорбції–адсорбції в газонаповнених порах.

5. Сформульовано загальний підхід до задачі обробки даних вимірювань в різних ядерно-фізичних методах аналізу твердих тіл. Підхід полягає в мінімізації згладжуючого функціоналу $T + \alpha R$, де T вимірює згоду між пророкуванням моделі і експериментальним сигналом, R – "штраф" у результаті порушення деяких апріорних обмежень на характеристики структурного елементу, α – узагальнений параметр регуляризації. Запропонований підхід складається з декількох етапів. На першому етапі для конкретного методу аналізу вивчається зв'язок розподілу досліджуваного структурного елементу з експериментальним сигналом, тобто визначається функціонал T . На другому – конкретизуються апріорні обмеження, тобто визначається функціонал R . І на третьому – в явному вигляді задається процедура визначення узагальненого параметра регуляризації. Розроблений підхід застосовано для таких, активно розвиваються ядерно-фізичних методів аналізу як NRA, PIXE, RBS, PALS.

6. У методі резонансних ядерних реакцій згода між пророкуванням моделі і експериментальним спектром засноване на рішенні лінійного інтегрального рівняння Фредгольма першого роду. При побудові ядра інтегрального рівняння враховані: енергетичний розкид вихідного пучка, страгглінг енергетичних втрат, ширина і форма резонансу, а також ефект Допплера. Рішення рівняння виходу проводилося в рамках методу регуляризації по Тихонову, а при визначенні УПР використовувався узагальнений принцип нев'язки.

7. У методі характеристичного рентгенівського випромінювання вимірюваний спектр являє собою суперпозицію множині вкладів, що перекриваються. Задачі, які виникають при інтерпретації спектрів в цьому методі (усунення фону, придушення шуму і поділ інформативних вкладів, що перекриваються), ефективно вирішені в рамках вейвлет-аналізу.

8. У методі резерфордівського зворотного розсіяння визначення профілів розподілу атомних компонентів можна звести до вирішення системи лінійних рівнянь, в якій дискретний спектр задає вектор правої частини. Запропоновано нову процедуру рішення рівняння виходу, яка заснована на уявленні про проекції вглиб мішені енергетичної шкали аналізатора. При цьому фактично відбувається визначення УПР. Продемонстровано, що таке подання дає можливість виявити і наочно сформулювати ті властивості задачі, які визначаються дискретизацією безперервних змінних в площині "глибина–енергія".

9. У спектроскопії часу життя позитронів вимірюваний сигнал є суперпозицією декількох корисних вкладів від позитронів, попередньо локалізованих на дефектах вакансійного типу і випадкової складової. Розроблено феноменологічну теорію, яка визначає математичну форму спектра часу життя позитронів. Для обробки даних вимірювань вперше запропоновано використовувати базис, в якому можливе одночасний опис як корисної складової, так і шуму. Показано, що обидві складові формують дві підмножини, які не перекриваються, в розкладанні по цьому базису, і що є якась оптимальна довжина розкладання, для якої як число корисних членів в розкладанні, так і їх характеристики залишаються практично незмінними. Визначення подібного підінтервалу є новою оригінальною процедурою завдання УПР. Запропоновано новий підхід до оцінки числа компонент в спектрі.

10. Розроблено чисельний метод ідентифікації та аналізу поверхні компактних атомних дефектів – об'єктів мезоуровня, який є простим, ефективним, стійким і допускає наочну геометричну інтерпретацію. Проведено аналіз алгоритмів, розроблено програмне забезпечення і на прикладі модельних кластерів проведено його тестування. Встановлено загальні якісні особливості оцінок площі поверхні і об'єму малих атомних систем.

11. Запропонований метод забезпечує одночасне однозначне визначення атомів поверхні і її мозаїчне уявлення, яке потім може бути використано для обчислення різних інтегральних характеристик. Розроблено загальний метод обчислення довільної подібної характеристики. Оскільки обов'язковою характеристикою компактного атомного утворення є його форма, то в рамках підходу, заснованого на геометричних моментах, вперше одержано аналітичні вирази для компонент вектору форми.

12. За допомогою розробленого методу досліджено процеси еволюції інтегральних властивостей нанооб'єктів при зміні числа атомів або в результаті зовнішніх впливів. На прикладі атомних кластерів, які самопідтримуються, показано, що в запропонованому методі коректно відтворюються розмірні осциляції і послідовність магічних чисел.

13. Розглянуто компактні дефектні утворення нанометрових розмірів, які занурені в кристалічну матрицю. Описано загальний метод, що дає змогу на атомному рівні детектувати появу компактної підмножини з дефектною кристалічніс-

тю, визначати його зовнішні межі і вимірювати інтегральні характеристики: об'єм, площу поверхні, коефіцієнт компактності і характеристичний вектор форми. Показано, що запропонований метод є одним з варіантів зв'язку атомного та мезоскопічного рівнів при послідовному багаторівневому комп'ютерному моделюванні.

14. Виконано комп'ютерний експеримент, в якому досліджувався процес схлопування пори, яка була спочатку сферичною. Одержано залежності параметрів форми пори від коефіцієнта стиснення і проведено їх порівняння з обчисленими аналітичними виразами. Показано, що метод дає можливість визначати фазу схлопування пори і напрямок її найбільш вірогідною подальшої еволюції.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ РОБІТ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Егорушкин В.Е. Электроны и фононы в неупорядоченных сплавах / В.Е. Егорушкин, **А.И. Кульментьев**, Е.В. Савушкин, А.Б. Кононенко, С.В. Альшев. – Новосибирск: Наука. Сиб.отд., 1989. – 272с.
2. **Кульментьев А.И.** Компьютерные эксперименты в статистической физике. Модель идеального газа / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева. / Часть 1. – Сумы: Изд-во СумГУ, 1996. – 108с.
3. **Кульментьев А.И.** Компьютерные эксперименты в статистической физике. Модель идеального газа / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева. / Часть 2. – Сумы: Изд-во СумГУ, 1997. – 115 с.
- 4 **Кульментьев А.И.** Методы анализа поверхности твердых тел / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева. / Сумы: Изд-во СумГУ, 2008. –158 с.
5. Егорушкин В.Е. Электронная структура и фазовые превращения в NiAl / В.Е. Егорушкин, **А.И. Кульментьев**, П.Э. Рубин. // ФММ. – 1985. – Т.60, В. 3.– С.421-427.
6. Egorushkin V.E. Electron structure and optical properties of Ni-Al / V.E. Egorushkin, **A.I. Kul'ment'ev**, P.E. Rubin // Solid State Communs. – 1986. –V.57, №10. – P.821-823.
7. Egorushkin V.E. The electronic phase diagram for the B2-R transition in NiTi / V.E. Egorushkin, **A.I. Kul'ment'ev**, A.Ya. Flat // J. Phys. F: Metal Phys. – 1987. – V.17. – P.289-293.
8. Синицкий И.А. Расчет зонной структуры упорядочивающихся сплавов в методе кластерных компонентов / И.А. Синицкий, В.Е. Егорушкин, **А.И. Кульментьев**, А.Н. Мень, В.Е. Панин // Изв. ВУЗов. Физика. – 1987. – №12. – С.79-81.
9. Егоров Р.Ф. Электронные состояния в частично упорядоченных магнитных металлах / Р.Ф. Егоров, В.Е. Егорушкин, **А.И. Кульментьев**, В.Б. Лапин, Р.А. Манешева // Изв. ВУЗов. Физика. – 1989. – №2. – С.67-72.
10. Григорьев А.Н. Изменение относительной интенсивности линий возбуждаемого ионами H^+ спектра ХРИ при переходе от случайного к ориентированному положению монокристалла / А.Н. Григорьев, А.Н. Дедик, **А.И. Кульментьев**, В.И. Муратов, В.С. Пелетминский, Е.В. Савушкин, В.Е. Сторишко // Поверхность. – 1991. – №9. – С.157-159.
11. Забашта О.И. Пакет программ для расчета разрешения по глубине в методе резонансных ядерных реакций / О.И. Забашта, **А.И. Кульментьев**, Ф.Э. Пиунова, В.Е. Сторишко / III Всесоюзн. конф. Микроанализ на ионных пучках. – Сумы,

1991. – С.235-239.
12. Егорушкин В.Е. Беспорядок смещений и реконструкция (001) грани вольфрама / В.Е. Егорушкин, **А.И. Кульментьев**, Е.В. Савушкин // Изв. ВУЗов. Физика. – 1991. – Т.34, №8. – С.24-35.
 13. Забашта О.И. Восстановление профиля концентрации примеси в методе резонансных ядерных реакций / О.И. Забашта, **А.И. Кульментьев**, В.Е. Сторишко, А.Е. Нестеренко // УФЖ. – 1993. – № 4. – С.494-500.
 14. Забашта О.И. Глубинное профилирование легких примесей методом резонансных ядерных реакций / О.И. Забашта, **А.И. Кульментьев**, В.Е. Сторишко // Изв. ВУЗов. Физика. – 1993. – № 5. – С.79-86.
 15. **Kul'ment'ev A.I.** Resonant nuclear reaction analysis with high depth resolution / A.I. Kul'ment'ev, V.E. Storizhko, O.I. Zabashta // Nucl. Instrum. Methods. – 1994. – V.В.85. – P.633-636.
 16. **Кульментьев А.И.** ЭВМ-эксперименты с одноатомными газами. I. Компьютерная модель идеального газа / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 1997. – №1(7). – С.100-104.
 17. **Кульментьев А.И.** ЭВМ-эксперименты с одноатомными газами. II. Измерение параметров свободного пробега / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 1997. – №1(7). – С.104-109.
 18. **Кульментьев А.И.** Моделирование столкновений частиц в скрещенных пучках / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 1997. – №2(8). – С.39-43.
 19. **Кульментьев А.И.** Компьютерный эксперимент по определению параметров течения плотного газа в вакуумированный объем / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева. // Вопросы атомной науки и техники, Серия: Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники. – 1999. – Вып. 1(9). – С.79-82.
 20. **Кульментьев А.И.** Компьютерные измерения параметров свободного пробега частиц газа в модели твердых сфер / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вопросы атомной науки и техники, Сер. Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники. – 1999. – Вып. 1(9). – С.83-86.
 21. **Кульментьев А.И.** Использование вейвлет-анализа для оценки и оптимального подавления шумов в спектрах характеристического рентгеновского излучения / А.И. Кульментьев // Изв. ВУЗов. Физика. – 1999. – №7. – С.57-63.
 22. **Кульментьев О.І.** Основана на вейвлет перетворенні оптимальна процедура придушення шумів в спектрах ХРВ / О.І. Кульментьев, В.В. Батурін, В.Ю. Сторішко // УФЖ. – 1999. – Т.44, №12. – С.1530-1535.
 23. **Кульментьев О.І.** Швидкий алгоритм аналізу спектрів часу життя позитронів / О.І. Кульментьев // УФЖ. – 2001. –Т.46, №11. – С.1225-1230.
 24. **Кульментьев А.И.** Исследование математической природы уравнения выхода в спектрометрии обратного рассеяния / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 2002. – №13(46).–С.27-39.
 25. **Кульментьев О.І.** Розв'язування рівняння виходу в задачі аналізу спектра зворотного розсіяння.1 / О.І. Кульментьев // УФЖ. – 2003. – Т.48, №3. – С.281-289.
 26. **Кульментьев О.І.** Розв'язання рівняння виходу в задачі аналізу спектра зворотного розсіяння.2 / О.І. Кульментьев // УФЖ. – 2003. – Т.48, №5. – С.492-499.

27. **Кульментьев А.И.** Новый подход к решению задачи анализа спектров обратного рассеяния / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 2004. – №10 (69). – С.131-142.
28. **Kul'ment'ev A.I.** Analysis of positron lifetime spectra via a fast Prony algorithm / A.I. Kul'ment'ev / Eur. Phys. J. Appl. Phys. – 2004. – V.25. – P.191-201.
29. **Kul'ment'ev A.I.** Application of Digital Spectral Analysis to decomposition of positron lifetime spectra / A.I. Kul'ment'ev // Problems of Atomic Science and Technology. Series: Nuclear Physics Investigations. 2005. – №6. – С.93-100.
30. **Кульментьев А.И.** Теоретическое описание процессов многократного рассеяния в методах анализа на пучках заряженных частиц / А.И. Кульментьев // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 2006. – № 9 (93). – С.108-119.
31. **Кульментьев А.И.** Кинематические характеристики процесса многократного рассеяния классических частиц / А.И. Кульментьев // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 2007. – № 1. С.163-177.
32. **Кульментьев А.И.** Описание свойств поверхности нанокластеров при атомистическом компьютерном моделировании / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева // Вісник СумДУ, Серія: Фізика, математика, механіка. – 2008.–№2.–С.137-146.
33. **Кульментьев А.И.** Метод измерения формы нанокластера при атомистическом компьютерном моделировании / А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева / Ж. нано- электрон. фіз. – 2009. – Т.1, №3. – С.60-73.
34. **Кульментьев А.И.** Моделирование на атомном уровне эволюции вакансионных пор в облучаемых материалах / А.И. Кульментьев // Ж. нано- электрон. фіз. – 2010.– Т.2, №4. – С.59-74.
35. **Кульментьев А.И.** Описание поверхности компактных нанообъектов / А.И. Кульментьев // Математическое моделирование. – 2011. – Т.23, № 4. – С.57-68.
36. **Кульментьев А.И.** Алгоритм детектирования на атомном уровне вакансионной поры и описания ее формы / А.И. Кульментьев // Вопросы атомной науки и техники, Серія: Мат. моделирование физических процессов. – 2012. – Вып.1. – С.29-42.
37. **Кульментьев А.И.** Измерение интегральных характеристик атомных кластеров при компьютерном моделировании / А.И. Кульментьев // Математическое моделирование. – 2012. – Т.24, №3. – С.97-112.
38. **Kul'ment'ev A.I.** Interpretation of positron lifetime spectra via least squares Prony method / A.I. Kul'ment'ev // Problems of Atomic Science and Technology. Series: Nuclear Physics Investigations. – 2013. – №3 (85). – P.63-68.
39. Егорушкин В.Е. О расчете из "первых принципов" n-частичных потенциалов межатомного взаимодействия / В.Е. Егорушкин, **А.И. Кульментьев**, К.А. Тарасенко / Деп.в ВИНТИ 6.04.89, №278-В89. – 42 с.
40. Определение профиля концентрации примеси в методе резонансных ядерных реакций / О.И. Забашта, **А.И. Кульментьев**, А.Е. Нестеренко, В.Е. Сторишко, Н.П. Дикий // Тез. докл. XXII совещ. по физике взаим. зар. частиц с крист. – Москва: МГУ, 1992. – С.127.
41. Storizhko V.E. Resonant Nuclear Reaction Analysis with High Depth Resolution /

- V.E. Storizhko, **A.I. Kul'ment'ev**, O.I. Zabashta / Abstract on 11 Intern. Conf. on Ion Beam Analysis – Hungary, 1993. – P.10.16.
42. **Kul'ment'ev A.I.** New method for the full processing of experimental spectra in the resonant reaction analysis. / A.I. Kul'ment'ev, O.I. Zabashta // Abstr. of 1-st Intern. Conf. Modification of Properties of Surface Layers of Non-Semiconducting Materials using Particle Beams, November 30 – December 4, 1993. – Sumy. – 1993. – P.99.
43. **Kul'ment'ev A.I.** Surface impurity atoms mixing during high intensity metal ion implantation / A.I. Kul'ment'ev, A.M. Tolopa // Industrial Applications of Ion Beam Implementation for Modifying Metal Properties. – San Sebastian, Spain, 29 August to 1 September, 1995. – P. P-70-A.
44. **Kul'ment'ev A.I.** Application of wavelet-analysis in PIXE spectra processing / A.I. Kul'ment'ev, V.V. Baturin, V.E. Storizhko // Ion beam surface diagnostics. Proceedings of the Eighth International Workshop on Ion Beam Surface Diagnostics – Uzgorod, August 25-29, 1998. – P.161-162.
45. **Кульментьев А.И.** Применение вейвлет-анализа при обработке спектров характеристического рентгеновского излучения / А.И. Кульментьев, В.В. Батулин, В.Е. Сторишко // 4-я Междунар. конф. Теория и техника передачи, приема и обработки информации (Новые информационные технологии) – Харьков, 28-30 сентября; научные труды. – Харьков: ХТУРЭ, 1998. – С.457-458.
46. Кульментьева О.П. Органические материалы и другие наноструктуры в солнечных элементах / О.П. Кульментьева, **А.И. Кульментьев** // Зб. тез конф. з фізики напівпровідників. – Київ, 21-23 квітня 2008.– С.98-99.
47. **Кульментьев А.И.** Использование кватернионов при исследовании электронного охлаждения пучков частиц / Конф. Фізика, електроніка та електротехніка. Суми 18-22 квітня 2011 р. – Суми: Изд-во СумДУ. – 2011. – С.114-115.

ПЕРЕЧЕНЬ ССЫЛОК

48. Simulation study of granular compaction dynamics under vertical tapping / D. Arsenović, S.B. Vrhovac, Z.M. Jakšić, Lj. Budinski-Petković, A.Be // Phys. Rev. – 2006. – V.E74. – P.061302 (14 p.).
49. Jalali P. Atomic size effect on critical cooling rate and glass formation / P. Jalali, Mo Li // Phys. Rev. – 2005. – V.B71. – P.014206 (12 p.).
50. Verma H.R. Atomic and Nuclear Analytical Methods. XRF, Mössbauer, XPS, NAA and Ion-Beam Spectroscopic Techniques / H.R. Verma. – Berlin: Springer-Verlag, 2007. – 375 p.
51. Shukla A. Analysis of positron lifetime spectra using quantified maximum entropy and a general linear filter / A. Shukla, M. Peter, L. Hoffmann // Nucl. Instrum. Methods. – 1993. – V.A335, №1-2. – P.310-317.

АНОТАЦІЯ

Кульментьєв О.І. Ідентифікація структури твердих тіл на основі ядерно-фізичних методів і комп'ютерного моделювання. – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. – Інститут електрофізики і радіаційних технологій Національної академії наук України, Харків, 2015.

У дисертації розроблений інтегрований підхід до дослідження структури твердих тіл і встановлення властивостей і взаємних зв'язків різних дефектів. Підхід базується на спільному використанні методів експериментальної, теоретичної фізики та комп'ютерного моделювання.

Експериментальний підхід заснований на ядерно-фізичних методах аналізу, тому варіювання типу падаючого випромінювання і параметрів пучка дає змогу досягти переважання взаємодії зондуючого випромінювання з обраним типом дефектів. Розроблено загальний підхід до вирішення обернених задач в таких методах і для ряду з них описана схема вибору параметра регуляризації.

Апарат теоретичної фізики використовувався для удосконалення моделі формування сигналу в методах аналізу на пучках іонів – адекватному урахуванню вкладу в експериментальний спектр багаторазово розсіяних іонів. Досліджено енергетичні розподілу подібних іонів і перерізу відповідних процесів.

Зв'язок різних дефектів вивчалася в рамках багаторівневого послідовного комп'ютерного моделювання. Запропоновано метод виділення на атомному рівні компактного дефектного утворення і вимірювання його інтегральних властивостей. Вперше одержані точні вирази для геометричних моментів атомного кластера і компонент вектора форми.

Ключові слова: структура твердого тіла, дефекти, пори, ядерно-фізичні методи аналізу, багаторівневе комп'ютерне моделювання, зворотні задачі.

АННОТАЦИЯ

Кульментьєв А.И. Идентификация структуры твердых тел на основе ядерно-физических методов и компьютерного моделирования. – Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика твердого тела. – Институт электрофизики и радиационных технологий Национальной академии наук Украины. – Харьков, 2015.

Диссертация посвящена разработке интегрированного подхода для исследования структуры твердых тел и установления свойств и взаимных связей дефектов на разных пространственно-временных уровнях. Подход базируется на совместном использовании методов экспериментальной и теоретической физики, а также компьютерного моделирования.

В качестве основы экспериментального подхода были выбраны ядерно-физические методы анализа, поскольку варьирование типа падающего излучения и параметров пучка позволяет достичь доминирующего характера взаимодействия с выбранным типом дефектов. Однако, несмотря на получающееся в результате этого преобладание вклада в экспериментальный сигнал от исследуемых дефектов, в спектре также присутствуют вклады от других подобных объектов (включая

матрицу), шум и вклады от процессов, отброшенных при построении модели взаимодействия первичного излучения с выбранным типом дефектов. Поэтому в каждом методе анализа необходимо решать некорректную обратную задачу рассеяния.

При решении подобных задач центральным является вопрос о соблюдении оптимального баланса между способностью модели предсказывать характеристики искомого структурного элемента и накладываемыми на эти характеристики априорными ограничениями. Формально это сводится к проблеме выбора обобщенного параметра регуляризации α .

В диссертации предложен общий метод решения обратных задач в ядерно-физических методах анализа и для ряда из них – конкретная схема выбора параметра α . Общей чертой большинства разработанных оригинальных схем является поиск таких форм представления сигнала, для которых возможно разделение информативных и избыточных вкладов.

Методы теоретической физики использовались для усовершенствования модели формирования сигнала в методах анализа на пучках ионов – адекватном учете вклада в экспериментальный спектр от ионов, испытавших два последовательных столкновения с атомами мишени. Исследованы энергетические распределения подобных ионов и сечения соответствующих процессов.

Связь дефектов на разных пространственно-временных уровнях изучалась в рамках многоуровневого последовательного компьютерного моделирования. Предложен оригинальный метод выделения на атомном уровне компактного дефектного образования с четко определенной поверхностью и измерения произвольных интегральных свойств такого образования. Впервые получены точные аналитические выражения для геометрических моментов атомного кластера с четко определенной поверхностью, которые позволяют измерить форму подобного кластера. Разработанный метод представляет большие возможности при исследовании эволюции некоторых дефектов, например, включений или пор в материалах под облучением.

Полученные результаты имеют как фундаментальное, так и прикладное значение при разработке новых материалов, обладающих комплексом заранее заданных свойств, в частности для усовершенствования характеристик конструкционных материалов, эксплуатируемых в активной зоне ядерного реактора.

Ключевые слова: структура твердого тела, дефекты, поры, ядерно-физические методы анализа, многоуровневое компьютерное моделирование, обратные задачи.

ABSTRACT

Kul'ment'ev A.I. Identification of the solids structure with nuclear methods of analysis and computer simulation. – Manuscript.

Thesis for the degree of Doctor of Physics and Mathematics, the specialty 01.04.07 – solid state physics. – Institute of Electrophysics & Radiation Technologies of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kharkov, 2015.

The thesis is concerned with development of integrated approach to the study of solids structure and mutual interconnections of different defects. The approach is based

on the sharing of experimental and theoretical methods along with computer simulations.

Experimental approach relies on nuclear methods of analysis since variation of incident radiation type and beam parameters allow achieve dominance in the interaction of the probe particles with particular type of defect. General approach to the solution of inverse problems in such methods is described, and for some of them the framework for choice of generalized regularization parameter is proposed.

The apparatus of theoretical physics was used to refine the model of signal formation in ion beam based methods, namely, adequate treatment of multiply scattered particles. The energy distribution of such particles and corresponding scattering cross-sections were considered in the rigorous statement.

Interconnection of different defects was studied in the framework of hierarchical multiscale modeling methodology. The method of both detection of compact atomic defect formation and calculation of its arbitrary integral characteristics was proposed. For the first time the exact analytical expression for geometric moments and vector form of defects like pores and self-maintained atomic clusters was obtained.

Keywords: structure of solids, defects, pores, nuclear methods of analysis, multiscale computer simulation, inverse problems.