

ПРОЯВЛЕНИЕ МНОГОЭЛЕКТРОННЫХ ЭФФЕКТОВ В УЛЬТРАМЯГКИХ РЕНТГЕНОВСКИХ СПЕКТРАХ ИЗЛУЧЕНИЯ КРИПТОНА И КСЕНОНА

Э. Т. Верховцева и П. С. Погребняк

Проведено исследование ультрамягких рентгеновских спектров излучения газообразного Kr и Xe в области энергий фотонов 55—560 эВ при энергиях возбуждающих электронов 0.6 и 1 кэВ. Обнаружено проявление сильных динамических эффектов взаимодействия np -вакансии ($n=3$ для Kr и $n=4$ для Xe) с электронами nd^{10} -подоболочки.

В $4p$ -фотоэлектронном спектре Xe проявились особенности, которые нельзя объяснить в рамках приближения Хартри—Фока [1, 2]. Вместо ожидаемого дублета зарегистрирован один острый пик, сдвинутый на 11 эВ в область меньших энергий связи относительно теоретического положения линии $4p_{3/2}$, и протяженный непрерывный спектр при больших энергиях связи. Вендин и Оно [3], применив для обработки этого спектра диаграммную многочастичную теорию, включающую в рассмотрение в качестве основных процессы $4p^5 \rightarrow 4d^8mf$ (m — дискретное) и $4p^5 \rightarrow 4d^8\epsilon f$ (ϵ — непрерывное), получили хорошее согласие с экспериментом и пришли к выводу, что $4p_{1/2, 3/2}$ -вакансии в Xe не существуют как элементарные возбуждения. Физическая картина такова, что $4p$ -дырочное состояние, если первоначально создано вследствие сильных динамических эффектов взаимодействия с электронами $4d^{10}$ -подоболочки быстро распадается в процессе супер-Костера-Кронига (сКК) $4p^5 \rightarrow 4d^8\epsilon f$. Главная линия $4p$ -фотоэлектронного спектра при энергии 145.5 эВ была отнесена к конфигурации $(4d^84f)_{3/2}$, а не к $4p_{3/2}^5$, как предполагалось ранее [1, 2]. Некоторые интересные особенности обнаружили и в $3p$ -фотоэлектронном спектре Kr [4]. Линии $3p_{1/2}$ и $3p_{3/2}$ имеют разную ширину и сдвинуты примерно на 3 эВ к меньшим энергиям связи относительно расчетных значений, полученных в приближении Хартри—Фока. Применив для этого спектра ту же обработку, что и для $4p$ -фотоэлектронного спектра Xe, авторы работы [5] показали, что наблюдаемый в $3p$ -фотоэлектронном спектре сдвиг линий связан с дипольными флуктуациями $3p$ -вакансии в процессе сКК $3p^5 \rightleftharpoons 3d^8\epsilon f$ вследствие ее взаимодействия с $3d$ -электронами.

Динамические эффекты взаимодействия np -вакансии ($n=3$ для Kr и $n=4$ для Xe) с электронами nd^{10} -подоболочки должны найти отражение и в ультрамягких рентгеновских (УМР) спектрах излучения этих атомов. Исследование УМР излучения в данном случае представляет интерес не только с точки зрения выявления особенностей в спектрах диаграммных переходов, затрагивающих уровни $3p_{1/2, 3/2}$ (Kr) и $4p_{1/2, 3/2}$ (Xe). Из этих спектров можно получить важную информацию о безызлучательных каналах распада $3p$ - и $4p$ -дырочных состояний Kr и Xe и тем самым проверить теоретические предсказания Вендина и Оно [3, 5] относительно процессов распада этих уровней. На основании вышеизложенного в данной работе изучались рентгеновские эмиссионные спектры атомов Kr

и Хе, возбужденных электронным пучком. Исследования проводились в районе диаграммных переходов $3d \rightarrow 4p$ в Хе и $3p \rightarrow 3d$ в Кг, а также в области энергий фотонов, где ожидается радиационный распад $3d^8$ - и $4d^8$ -конфигураций Кг и Хе соответственно.

Эксперимент

Эксперименты проводились на установке (рис. 1), состоящей из рентгеновской трубки 1 со сверхзвуковой струей Кг или Хе в качестве антикатада [6, 7] и спектрометра скользящего падения РСМ-500 [8]. Сверхзвуковая струя газа 2 формировалась при помощи конического сопла 3 с диаметром критического сечения $d_{кр.} = 0.19$ мм и отношением площадей

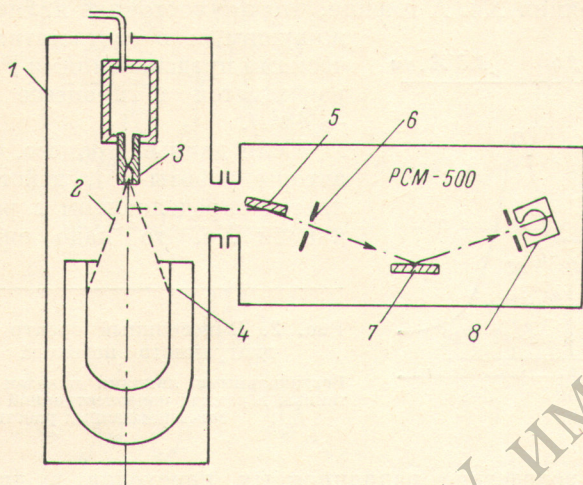


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

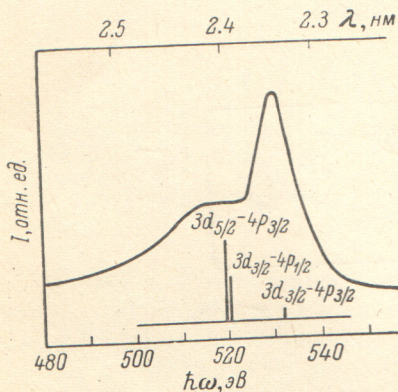
1 — рентгеновская трубка с газоструйным антикатодом, 2 — сверхзвуковая струя инертного газа, 3 — сверхзвуковое коническое сопло, 4 — конденсационный насос, 5 — фокусирующее зеркало — фильтр, 6 — входная щель, 7 — дифракционная решетка, 8 — проточный пропорциональный счетчик.

выходного сечения к критическому $S_{вых.}/S_{кр.} = 36.5$. Для откачки газа струи использовался криогенный насос 4, охлажденный жидким водородом. На расстоянии 5 мм от среза сопла струя пересекалась пучком электронов с энергией, изменяющейся от 0.6 до 1 кэВ. Плотность тока в пучке при этом изменялась от $5 \cdot 10^{-2}$ до $5 \cdot 10^{-1}$ А/см². Излучение, возникающее в месте пересечения струи электронным пучком, с помощью зеркала 5 фокусировалось на входную щель монохроматора 6 и разлагалось в спектр дифракционной решеткой 7. При регистрации спектра в области энергий фотонов $55 \div 250$ эВ использовались решетки с радиусом кривизны 2 м, а в области $250 \div 560$ эВ — 6 м. Приемником излучения служил проточный пропорциональный счетчик 8 с окном из нитроцеллюлозы толщиной 1000 Å, наполненный метаном. Спектр регистрировался при давлении и температуре газа на входе в сопло 1 атм. и 550 К, обеспечивающих атомарный состав струи [9]. Концентрация частиц в месте возбуждения струи электронами была 10^{17} см⁻³. Давление газа в камере струи при этом составляло 10^{-5} мм рт. ст.

Результаты и их обсуждение

На рис. 2 приведен спектр излучения Хе в районе диаграммного перехода $3d \rightarrow 4p$. Несмотря на то что начальное состояние этого перехода представляет дублет (спин-орбитальное расщепление $\Delta 3d_{3/2, 5/2} = 12.6$ эВ, ширина уровней $\Gamma(3d_{3/2, 5/2}) = 0.5$ эВ [4]), профиль эмиссионного спектра в общих чертах подобен профилю $4p$ -фотоэлектронного спектра Хе [1, 2]

и значительно отличается от вида спектра, предсказанного одноэлектронной моделью. Действительно, вместо трех ожидаемых линий наблюдается одна при энергии 531 эВ и непрерывное распределение интенсивности в области, примыкающей к ней со стороны меньших энергий фотонов. Если эту линию отнести к переходу $3d_{5/2} \rightarrow 4p_{3/2}$, то энергия конечного состояния, определенная по разности энергий $3d_{5/2}$ -дырочного состояния и радиационного перехода, согласуется с энергетическим положением острого пика в $4p$ -фотоэлектронном спектре Хе. Кроме того, ширина эмиссионного спектра у основания около 50 эВ (аппаратурное уширение в этой области равно 4 эВ) сравнима с соответствующей шириной фотоэлектронного спектра. Таким образом, необычно широкий спектр в районе диаграммного перехода $3d \rightarrow 4p$ отражает главные особенности $4p$ -дырочного состояния Хе. А именно, что это состояние является короткоживущим и в соответствии с теоретическими предсказаниями [3] эффективно распадается в процессе сКК $4p^5 \rightarrow 4d^8 \epsilon f$.



Если данный процесс, как считают авторы работы [3], действительно является определяющим в распаде $4p$ -вакансии Хе, то надо ожидать появ-

Рис. 2. Эмиссионный спектр Хе в области диаграммного перехода $3d \rightarrow 4p$.

Вертикальными линиями показан спектр, рассчитанный в рамках одноэлектронной модели с использованием данных работы [4].

ление спектра вследствие радиационных переходов в двухкантных конфигурациях $4d^8$. Действительно, как видно из рис. 3, а, при возбуждении Хе электронами с энергией 1 кэВ в области энергий фотонов 60—70 эВ зарегистрирован очень интенсивный спектр, излучаемый ионами $4d^8$ -конфигурации при переходах $4d^8 5p^6 \rightarrow 4d^9 5p^5$.¹ Однако при энергии возбуждающих электронов 1 кэВ ионы указанной конфигурации могут возникать и в ряде других элементарных процессов, среди которых существенную роль может играть Оже-переход $3d^9 \rightarrow 4d^8$ [10]. На рис. 3, б приведен тот же спектр, только зарегистрированный при энергии возбуждающих электронов 0.6 кэВ, когда $3d^{10}$ -подоболочка не ионизировалась. В этом случае ионы $4d^8$ -конфигурации образуются в процессах сКК $4p^5 \rightarrow 4d^8$ и $4s \rightarrow 4d^8$, а также в результате двойной ионизации $4d^{10}$ -подоболочки. Для подтверждения того факта, что происхождение спектра в области энергий фотонов 60—70 эВ обусловлено в основном распадом $4p$ -вакансии при переходах $4p^5 \rightarrow 4d^8 \epsilon f$, была проведена оценка относительных вероятностей образования ионов $4d^8$ -конфигурации (W) в вышеперечисленных процессах (см. таблицу). Расчет величины W при переходах $4s \rightarrow 4d^8$ (W_1) и $4p^5 \rightarrow 4d^8$ (W_2) проводился по формулам

$$W_1 = \frac{\sigma_{4s}}{\sigma_{4d}} \frac{\Gamma(4s \rightarrow 4d^8)}{\Gamma(4s)}, \quad (1)$$

$$W_2 = \frac{\sigma_{4p}}{\sigma_{4d}} \frac{\Gamma(4p^5 \rightarrow 4d^8)}{\Gamma(4p)}, \quad (2)$$

где σ_{4s} , σ_{4p} , σ_{4d} — сечения ионизации $4s^2$ -, $4p^6$ -, $4d^{10}$ -подоболочек электронами; $\Gamma(4s)$, $\Gamma(4p)$ — полные ширины уровней $4s$ и $4p$; ($4s \rightarrow 4d^8$),

¹ Идентификация спектра проводилась по разности экспериментальных значений энергии начального и конечного состояний указанного перехода [1, 10]. Энергии радиационных переходов между компонентами мультиплетной структуры начального и конечного состояний перехода рассчитывалась также методом Хартри—Фока.

$\Gamma(4p^5 \rightarrow 4d^8)$ — парциальные ширины этих уровней для рассматриваемых переходов. Сечения ионизации подболочек электронами рассчитывались по формуле Бете [11] с использованием данных работы [12] для сечений фотоионизации. При определении отношений $\Gamma(4s \rightarrow 4d^8)/\Gamma(4s)$

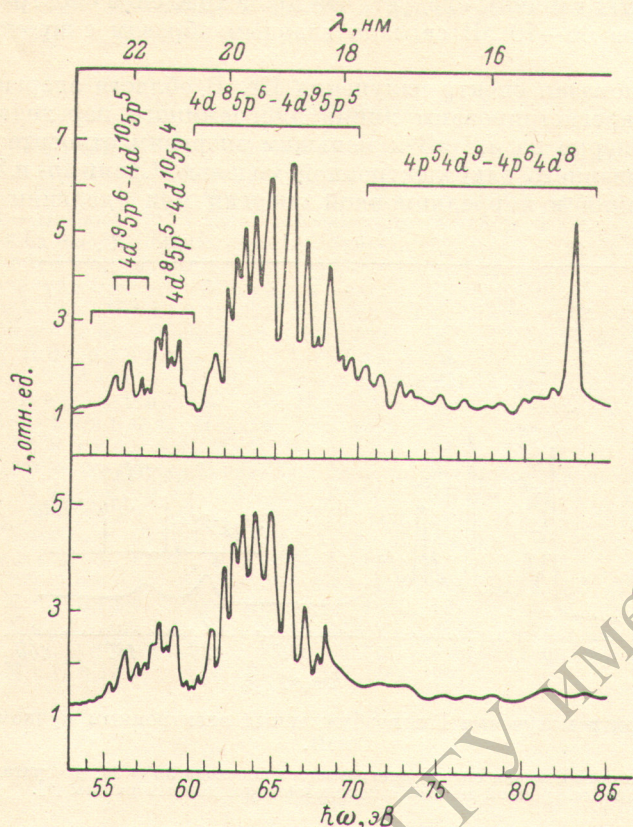


Рис. 3. УМР спектр излучения Хе в области энергий фотонов 55—85 эВ, возбужденный электронным пучком с энергией 1 кэВ (а) и 0.6 кэВ (б).

Интенсивность спектра нормирована на ток электронного пучка.

и $\Gamma(4p^5 \rightarrow 4d^8)/\Gamma(4p)$ использовались результаты работ [13,3].² В четвертом столбце таблицы приведена вероятность двойной ионизации W_3 , рассчитанная Карлсоном и Нестором [14] в приближении внезапных возмущений. С целью проверки сделанных оценок проводилось сопоставление рассчитанной суммарной вероятности образования ионов $4d^8$ -конфигурации в рассмотренных процессах $W' = 0.031$ с соответствующей величиной

Относительные вероятности образования nd^8 -конфигураций Кг и Хе в различных элементарных процессах ($n=3$ для Кг и $n=4$ для Хе)

Элемент	W_1 ($ns \rightarrow nd^8$)	W_2 ($np^5 \rightarrow nd^8$)	W_3 [14]	Суммарная вероятность	
				W' настоящая работа	W'' эксперимент [15]
Хе	0.002	0.024	0.005	0.031	0.05
Кг	0.0005	0.059	0.008	0.068	0.075

² Отношение $\Gamma(4p^5 \rightarrow 4d^8)/\Gamma(4p)$ определялось, исходя из того, что около 70% общей интенсивности $4p$ -фотоэлектронного спектра приходится на переходы $4p^5 \rightarrow 4d^8 \epsilon f$ [3].

$W'' = 0.05$, определенной из экспериментальной зависимости сил осцилляторов от энергии потерь для многозарядных ионов Хе [15]. С учетом используемых в расчетах приближений наблюдается удовлетворительное согласие экспериментальных значений W' с расчетными W'' . Из сопоставления данных таблицы следует, что происхождение спектра в области энергий фотонов 60—70 эВ связано главным образом с процессом сКК $4p^5 \rightarrow 4d\epsilon f$.

На рис. 4 показан спектр излучения Кг. В области энергий фотонов 120—130 эВ зарегистрированы линии диаграммного перехода $3p \rightarrow 3d$, сдвинутые примерно на 4.3 эВ к меньшим энергиям относительно положения, предсказанного одноэлектронной моделью. Сдвиг $3p$ - и $3d$ -уровней за счет изменения в корреляционной энергии при удалении электрона

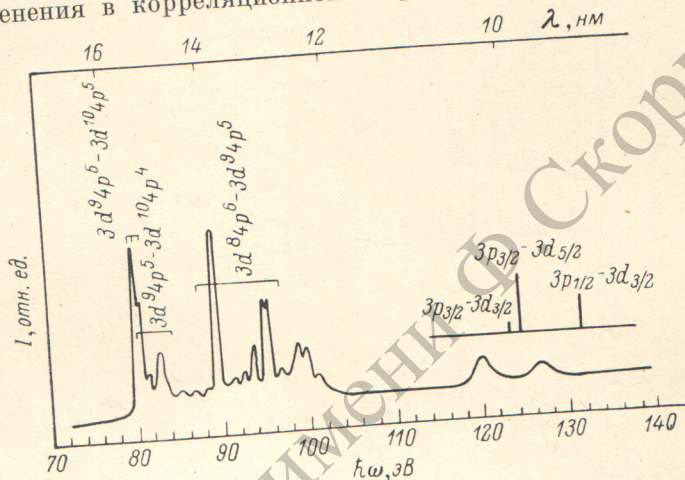


Рис. 4. УМР спектр излучения Кг, возбужденный электронным пучком с энергией 1 кэВ.

Вертикальными линиями показан спектр диаграммного перехода $3p \rightarrow 3d$, рассчитанный в рамках одноэлектронной модели с использованием данных работы [4].

из атома, не учитываемый одноэлектронной моделью, имеет примерно одну и ту же величину [4] и в эмиссионном спектре не проявится. Поэтому наблюдаемое в спектре смещение линий на 4.3 эВ относительно расчетных значений мы связываем с дипольными флуктуациями $3p$ -дырочного состояния в процессе сКК $3p^5 \rightleftharpoons 3d^8\epsilon f$. Кроме того, поскольку $3p_{1/2, 3/2}$ -уровни Кг лежат в энергетической области мультиплетной структуры $3d^8$ -конфигурации, помимо виртуальных переходов $3p^5 \rightleftharpoons 3d^8\epsilon f$, приводящих к сдвигу уровней $3p_{1/2}$ и $3p_{3/2}$, возможны реальные переходы $3p^5 \rightarrow 3d^8\epsilon f$, приводящие к их распаду. В случае Кг процесс сКК $3p^5 \rightarrow 3d^8\epsilon f$ разрешен частично и вносит больший вклад в распад уровня $3p_{1/2}$, обуславливая тем самым его большую ширину [4, 5]. В наших экспериментах распад $3p$ -дырочного состояния в процессе $3p^5 \rightarrow 3d^8\epsilon f$ проявляется в наблюдении интенсивного спектра в области энергий фотонов 88—96 эВ (рис. 4). Действительно, проведенный анализ показывает, что в области 88—96 эВ спектр излучается ионами $3d^8$ -конфигурации при переходах $3d^8 4p^6 \rightarrow 3d^9 4p^5$. Оценка относительных вероятностей образования двух вакантных $3d^8$ -конфигураций Кг в различных элементарных процессах проводилась так же, как для $4d^8$ -конфигурации Хе [см. формулы (1), (2) и таблицу]. При этом для определения отношений $\Gamma(3s \rightarrow 3d^8)/\Gamma(3s \rightarrow 3p)$ и $\Gamma(3p^5 \rightarrow 3d^8)/\Gamma(3p)$ использовались результаты работ [16, 5]. Из сопоставления данных таблицы следует, что происхождение спектра в области энергий фотонов 88—96 эВ связано в основном с процессом сКК $3p^5 \rightarrow 3d^8\epsilon f$.

Таким образом, в УМР спектре Хе сильные динамические эффекты многоэлектронных взаимодействий проявляются в наблюдении необычно широкого спектра в области диаграммного перехода $3d \rightarrow 4p$ и интенсив-

ного спектра $4d^8 5p^6 \rightarrow 4d^9 5p^5$ в области энергий фотонов 60—70 эВ. В УМР спектре Кг связь $3p$ -вакансии с $3d^{10}$ -подоболочкой обнаруживается в сдвиге линий диаграммного перехода $3p \rightarrow 3d$ примерно на 4.3 эВ в области меньших энергий фотонов относительно положения, предсказанного одноэлектронной моделью, а также в наблюдении интенсивного спектра $3d^8 4p^6 \rightarrow 3d^9 4p^5$ в области 88—96 эВ.

Литература

- [1] K. Siegbahn, C. Nordling, G. Johansson, J. Hedman, P. F. Hedin, K. Hamrin, U. Gelius, T. Bergmark, L. O. Werme, R. Manne, Y. Baer. ESCA Applied to Free Molecules, North-Holland Publ. Comp., Amsterdam—London, 1969.
- [2] U. Gelius. J. Electr. Spectr., 5, 985, 1974.
- [3] G. Wendin, M. Ohno. Phys. Ser., 14, 148, 1976.
- [4] S. Svensson, N. Mårtensson, E. Basillier, P. Å. Malmquist, U. Gelius, K. Siegbahn. Phys. Ser., 14, 141, 1976.
- [5] M. Ohno, G. Wendin. J. Phys., B11, 1575, 1978.
- [6] П. С. Погребняк, Ю. А. Павленко, Э. Т. Верховцева, Я. М. Фогель, В. Ф. Удовенко. ПТЭ, 5, 193, 1974.
- [7] Э. Т. Верховцева, В. И. Яременко, П. С. Погребняк, А. Е. Овечкин. ПТЭ, 4, 210, 1976.
- [8] А. П. Лукирский, И. А. Брытов, Н. И. Комьяк. В сб.: Аппаратура и методы рентгеновского анализа, № 2, 4. СКБ РА. Машиностроение, Л., 1967.
- [9] П. С. Погребняк, Е. В. Гнатченко, Э. Т. Верховцева, Я. М. Фогель. Изв. АН СССР, сер. физ., 40, 307, 1976.
- [10] L. O. Werme, T. Bergmark, K. Siegbahn. Phys. Scr., 6, 141, 1972.
- [11] G. Peach. J. Phys., B1, 1088, 1968.
- [12] D. J. Kennedy, S. T. Manson. Phys. Rev., A5, 227, 1972.
- [13] E. J. McGuire. Phys. Rev., A9, 1840, 1974.
- [14] T. A. Carlson, C. W. Nestor, Jr. Phys. Rev., A8, 2887, 1973.
- [15] Th. M. El-Sherbini, M. J. Van der Wiel. Physica, 62, 119, 1972.
- [16] E. J. McGuire. Phys. Rev., A5, 1052, 1972.

Поступило в Редакцию 30 мая 1979 г.