

УДК 539.184 : 546.811 + 546.98].54-128

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СЕЧЕНИЙ ФОТОИОНИЗАЦИИ L-ПОДОБОЛОЧЕК ОЛОВА И ПАЛЛАДИЯ

Н. А. Боровой, А. З. Жмудский, Л. А. Мусатенко
и В. И. Шияновский

Обсуждается методика вычисления сечений фотоионизации L_1 -, L_2 -, L_3 -подоболочек из экспериментально полученных интенсивностей линий флуоресцентного L -спектра возбужденного монохроматическим и полихроматическим излучением. Определены сечения L -подоболочек Sn и Pd для ряда энергий диапазона 5—9 кэВ.

Сечения фотоионизации L -подоболочек некоторых тяжелых атомов изучены экспериментально и теоретически в работах [1, 2]. Имеются расчеты и для элементов $Z \leq 34$ [3, 4]. Сечения же L -подоболочек элементов второго большого периода, особенно для энергий фотонов, не на много превышающих энергию их ионизации (где можно ожидать расхождения теоретических и экспериментальных значений сечений [5]), практически не исследованы.

Поскольку возможные каналы распада первичных вакансий хорошо известны, то можно, в принципе, из экспериментально полученных относительных интенсивностей рентгеновского флуоресцентного L -спектра оценить отношения сечений $\sigma_{L_1} : \sigma_{L_2} : \sigma_{L_3}$. Некоторая неопределенность получаемого таким путем результата связана с тем, что обычно для элементов $37 \leq Z \leq 54$ возбуждение флуоресцентных L -спектров осуществляется с помощью полихроматического излучения.

Есть, однако, две возможности для устранения этой неопределенности. Во-первых, можно учесть спектральное распределение тормозного излучения, относительную интенсивность компонент смешанного спектра и геометрию съемки, т. е. фактически применить понятие «эффективной длины волны» [6]. Это длина волны такого монохроматического излучения, действие которого по возбуждению вторичных спектров эквивалентно действию полихроматического излучения, разумеется, в расчете на одно и то же число возбуждающих частиц. Можно также возбуждать спектры монохроматическим излучением. Мы использовали обе возможности, и таким образом, в работе исследованы сечения фотоионизации L -подоболочек Sn и Pd из экспериментально полученных относительных интенсивностей линии флуоресцентного L -спектра, возбужденного как монохроматическим, так и полихроматическим излучением.

Рентгеновское излучение CuK_α и SrK_α , отраженное от изогнутого графитового монохроматора, попадало на излучатель, расположенный в бабране спектрографа ДРС-2. Исследуемые L -спектры Sn и Pd, отраженные в первом порядке от кристалла кварца (1010), снимались на пленку РФ-3

При возбуждении L -спектров смешанным излучением использовался ДРС-2 в стандартном варианте и регистрировались флуоресцентные спектры, отраженные в первом порядке от кристалла кварца (1011). В количестве материала анода и катода прямого накала был выбран вольфрам. В этом случае искажение экспериментальных результатов за счет распыления катода и осаждения его вещества на анод практически отсутствовало.

Пленки фотометрировались на двухлучевом микрофотометре ИФО-451. Экспериментальные интенсивности линий исправлялись на вертикальную расходимость лучей вторичного пучка, ограничение апертуры кристалла, поглощение первичного и самопоглощение вторичного излучения, денситометрическую характеристику пленки.

Как известно [7], для интенсивности линии q рентгеновского спектра, излучаемой при заполнении вакансии в электронной оболочке i , можно записать

$$I_{iq} \sim \sigma_i \omega_i F_{iq}, \quad (1)$$

здесь σ_i — сечение ионизации, ω_i — относительная вероятность радиационного заполнения вакансии (конкурирующие процессы — переходы Оже) и F_{iq} — относительная вероятность радиационного перехода $i \rightarrow q$ (конкурирующие процессы — остальные радиационные переходы).

Величины ω_i и F_{iq} можно выразить через полную Γ_i , радиационную Γ_i^R ширины уровня i и долю радиационной ширины уровня Γ_{iq}^R , соответствующую излучаемой линии q ,

$$\omega_i = \Gamma_i^R / \Gamma_i, \quad F_{iq} = \Gamma_{iq}^R / \Gamma_i. \quad (2)$$

Таким образом,

$$I_{iq} \sim \sigma_i \Gamma_{iq}^R / \Gamma_i. \quad (3)$$

При ионизации L_1 -, L_2 -, L_3 -подоболочек атома фотоном с вероятностями P_1, P_2, P_3 ионизируются и верхние M - и N -оболочки (эффект «встряхивания»). Атом оказывается в состоянии двукратной ионизации: L_1X, L_2X, L_3X ($X = M, N$). Этот процесс ведет к появлению группы спутников и уменьшает интенсивность диаграммных линий. В этом случае выражение для интенсивности имеет вид

$$I_{iq} \sim \sigma_i (1 - P_i) \frac{\Gamma_{iq}^R}{\Gamma_i}. \quad (3a)$$

Двух- и трехкратно ионизированные атомы с вероятностями f_{12}, f_{13}, f_{23} получают также за счет переходов Костера—Кронига (КК) $L_1 - L_2X; L_1 - L_3X; L_2 - L_3X; L_1X - L_2XX; L_1X - L_3XX; L_2X - L_3XX$ ($X = M, N$). Тогда интенсивности спутников, для которых производящими являются L_{β_3} -, L_{β_1} -, $L_{\alpha_{1,2}}$ - и L_{β_2} -линии, можно записать в таком виде:

$$\left. \begin{aligned} (I_{\beta_3 \text{ встр.}})_{\text{сат.}} &\sim \frac{\Gamma_{\beta_3}^R}{\Gamma_{L_1}} \sigma_{L_1} P_1; \\ (I_{\beta_1 \text{ встр.}})_{\text{сат.}} &\sim \frac{\Gamma_{\beta_1}^R}{\Gamma_{L_2}} (\sigma_{L_2} P_2 + \sigma_{L_1} P_1); \\ (I_{\alpha_{1,2} \text{ встр.}})_{\text{сат.}} &\sim \frac{\Gamma_{\alpha_1}^R + \Gamma_{\alpha_2}^R}{\Gamma_{L_3}} [\sigma_{L_3} P_3 + \sigma_{L_1} P_1 (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} P_2 f_{23}]; \\ (I_{\beta_2 \text{ встр.}})_{\text{сат.}} &\sim \frac{\Gamma_{\beta_2}^R}{\Gamma_{L_3}} [\sigma_{L_3} P_3 + \sigma_{L_1} P_1 (f_{12} f_{23} + f_{13}) + \sigma_{L_2} P_2 f_{23}]; \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

$$(I_{\beta_3 \text{ КК}})_{\text{сат.}} \sim 0;$$

$$(I_{\beta_1 \text{ КК}})_{\text{сат.}} \sim \frac{\Gamma_{\beta_1}^R}{\Gamma_{L_2}} \sigma_{L_1} (1 - P_1) f_{12};$$

$$(I_{\alpha_{1,2} \text{ КК}})_{\text{сат.}} \sim \frac{\Gamma_{\alpha_1}^R + \Gamma_{\alpha_2}^R}{\Gamma_{L_3}} [\sigma_{L_1} (1 - P_1) (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} (1 - P_2) f_{23}]; \quad (5)$$

$$(I_{\beta_2 \text{ КК}})_{\text{сат.}} \sim \frac{\Gamma_{\beta_2}^R}{\Gamma_{L_3}} [\sigma_{L_1} (1 - P_1) (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} (1 - P_2) f_{23}].$$

Экспериментально измерялась интенсивность каждой диаграммной линии вместе с ее сателлитами, поэтому в качестве рабочих формул целесообразно взять следующие отношения:

$$\frac{I_{\beta_3+\text{сат.}}}{I_{\beta_1+\text{сат.}}} = \frac{\sigma_{L_1} \frac{\Gamma_{\beta_3}^R}{\Gamma_{L_1}}}{\frac{\Gamma_{\beta_1}^R}{\Gamma_{L_2}} [\sigma_{L_2} + \sigma_{L_1} f_{12} (1 - f_{23})]}; \quad (6)$$

$$\frac{I_{\beta_3+\text{сат.}}}{I_{\beta_2+\text{сат.}}} = \frac{\sigma_{L_1} \frac{\Gamma_{\beta_3}^R}{\Gamma_{L_1}}}{\frac{\Gamma_{\beta_2}^R}{\Gamma_{L_3}} [\sigma_{L_3} + \sigma_{L_1} (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} f_{23}]}; \quad (7)$$

$$\frac{I_{\beta_1+\text{сат.}}}{I_{\alpha_{1,2}+\text{сат.}}} = \frac{\frac{\Gamma_{\beta_1}^R}{\Gamma_{L_2}} [\sigma_{L_2} + \sigma_{L_1} f_{12} (1 - f_{23})]}{\frac{\Gamma_{\alpha_1}^R + \Gamma_{\alpha_2}^R}{\Gamma_{L_3}} [\sigma_{L_3} + \sigma_{L_1} (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} f_{23}]} \quad (8)$$

При выводе соотношений (4)–(8) пренебрегалось возбуждающим действием выбитых фотоэлектронов, учитывались сателлиты только двух- и трехкратной ионизации, считалось, что распад двухвакансионного состояния ввиду значительно большей ширины L -подуровней по сравнению с M -ширинами проходит только за счет заполнения более глубокой вакансии, а вероятности переходов (КК) одни и те же в атоме с одной или двумя дырками. Для простоты предполагалось также, что вероятности встряхивания для L_1 -, L_2 -, L_3 -подоболочек одинаковы, т. е. $P_1 = P_2 = P_3$, а радиационные и полные ширины уровней не меняются при появлении дополнительных вакансий: $\Gamma_i = \Gamma_i^R$, $\Gamma_{iq}^R = \Gamma_{iq}^R$.

Таким образом, решив систему (6)–(8) относительно $\sigma_{L_2}/\sigma_{L_1}$ и $\sigma_{L_3}/\sigma_{L_1}$, можно найти отношение сечений $\sigma_{L_1}:\sigma_{L_2}:\sigma_{L_3}$, причем из трех уравнений достаточно либо первого и второго, либо первого и третьего (для определения отношения сечений необходимо знать относительные интенсивности трех линий, для которых начальные состояния соответствующих переходов определяются вакансиями в L_1 -, L_2 -, L_3 -подоболочках). В данной работе расчет $\sigma_{L_1}:\sigma_{L_2}:\sigma_{L_3}$ выполнялся как по $L_{\alpha_{1,2}}$ -, L_{β_1} -, L_{β_2} -, так и по L_{β_1} -, L_{β_2} -, L_{β_3} -линиям; полученные значения затем усреднялись.

Полные ширины уровней, входящие в уравнения (6), (7), (8), определялись как разность естественных ширин L_{α_1} -, L_{β_1} -, L_{β_3} -линий и соответствующих полных ширин M_3 -, M_4 -, M_5 -уровней. Значения естественных ширин линий находились путем усреднения экспериментальных результатов [8–10]. Средняя погрешность при этом не превышала 10%. Данные по ширинам M -уровней взяты из теоретических расчетов [11].

Рассчитанные таким образом естественные ширины L -уровней приведены в табл. 1 как случай а. Кроме этого, рассматривались еще два возможных варианта: б — в формулах (6)–(8) использованы расчетные Γ_{L_m} ($m=1, 2, 3$) [12]; в — Γ_{L_m} определялись из соотношений

$$\Gamma_{L_3} = \Gamma_{K_{\alpha_1}} - \Gamma_K;$$

$$\Gamma_{L_2} = \Gamma_{K_{\alpha_2}} - \Gamma_K;$$

$$\Gamma_{L_1} = \Gamma_{L_{\beta_3}} - \Gamma_{M_3}; \quad \Gamma_{M_3} = \Gamma_{K_{\beta_1}} - \Gamma_K.$$

При этом были использованы естественные ширины K_{α_1} -, K_{α_2} -, K_{β_1} -, L_{β_3} -линий и ширина K -уровня, приведенные соответственно в работах [10, 13].

Таблица 1
Ширина L-уровней Sn и Pd

Излучатель		Γ_{L_1} , эВ	Γ_{L_2} , эВ	Γ_{L_3} , эВ
Sn	a	3.1	2.7	2.4
	b	8.0	3.0	2.6
	в	5.4	2.3	1.1
Pd	a	3.0	2.4	2.2

Таблица 2
Относительные интенсивности линий L-спектра Sn и Pd

Излучатель	Возбуждающее излучение	E, кэВ; E _{эфф.} , кэВ	I _{L_{α1}} , сат.	I _{L_{β1}} , сат.	I _{L_{β3}} , сат.	I _{L_{β2}} , сат.	I _{L_{β4}} , сат.
Sn	CrK _α	5.41	100	62.6	10.4	16.6	7.2
	L _{α, β} W (15 кВ)	6.85	100	46.4	9.7	13.0	5.1
	L _{α, β} W (28 кВ)	8.00	100	52.8	11.6	14.2	6.6
	CuK _α	8.04	100	48.5	11.2	12.3	7.0
Pd	CrK _α	5.41	100	36.9	5.4	5.0	3.2
	L _{α, β} W (15 кВ)	5.90	100	40.1	5.5	4.6	2.9
	L _{α, β} W (15 кВ)	6.76	100	37.0	4.8	3.7	3.1

Таблица 3
Отношение сечений фотоионизации L-подоболочек Sn и Pd

Элемент	Возбуждающее излучение	E, кэВ; E _{эфф.} , кэВ	$\sigma_{L_1} : \sigma_{L_2} : \sigma_{L_3}$	
			настоящая работа [14]	
Sn	CrK _α	5.41	0.86 : 1.51 : 2	
	L _{α, β} W (15 кВ)	6.85	0.92 : 1.27 : 2	
	L _{α, β} W (28 кВ)	8.00	1.11 : 1.46 : 2	
	CuK _α	8.04	1.17 : 1.47 : 2	
Pd	CrK _α	5.41	0.60 : 1.10 : 2	
	L _{α, β} W (15 кВ)	5.90	0.63 : 1.24 : 2	
	L _{α, β} W (23 кВ)	6.76	0.59 : 1.23 : 2	

Таблица 4
Сечение фотоионизации L-подоболочек Sn и Pd

Элемент	Возбуждающее излучение	E, кэВ; E _{эфф.} , кэВ	σ_{L_1} , барн/атом		σ_{L_2} , барн/атом		σ_{L_3} , барн/атом	
			настоящая работа	[14]	настоящая работа	[14]	настоящая работа	[14]
Sn	CrK _α	5.41	23200	21100	40700	31650	53900	57000
	L _{α, β} W (15 кВ)	6.85	14000	13770	19300	16550	30400	28900
	L _{α, β} W (28 кВ)	8.00	10600	10150	14000	10500	19200	18420
	CuK _α	8.04	10900	10150	13700	10500	18700	18200
Pd	CrK _α	5.41	13100		24000		43600	
	L _{α, β} W (15 кВ)	5.90	10500		20700		33500	
	L _{α, β} W (23 кВ)	6.76	6900		14300		23300	

Варианту а было отдано предпочтение по следующим соображениям. Экспериментальные значения $\Gamma_{L\alpha_1}$, $\Gamma_{L\beta_1}$, $\Gamma_{L\beta_3}$, полученные разными авторами [8-10], отличаются мало и, следовательно, их можно считать разумными. Ширины Γ_{L_m} составляют основную часть этой величины, так как $\Gamma_{M_n} \ll \Gamma_{L_m}$ ($n=3, 4, 5$), поэтому Γ_{L_m} с точностью 1 эВ должны получаться правильными. В этом случае отношения $\sigma_{L_2}/\sigma_{L_1}$, $\sigma_{L_3}/\sigma_{L_1}$, наиболее близки к теоретически рассчитанным для Sn [14]. В варианте б ширина Γ_{L_1} оказывается больше, чем естественная ширина L_{β_3} -линии. В варианте в ширина Γ_{M_3} определяется неточно, так как $\Gamma_{K\beta_1} \approx \Gamma_K \gg \Gamma_{M_3}$.

Используемые в выражениях (6)–(8) радиационные ширины линий рассчитаны в [15], а вероятности переходов Костера—Кронига в [16, 17].

Взяв суммарные сечения фотоэффекта, приведенные в [18], и полученные отношения $\sigma_{L_1} : \sigma_{L_2} : \sigma_{L_3}$, можно определить сечение каждой из L -подоболочек в отдельности.

При облучении образца полихроматическим излучением полагалось, что возбуждающее действие первичного спектра эквивалентно возбуждающему действию монохроматического излучения с длиной волны, равной эффективной длине волны смешанного рентгеновского спектра [6]. Экспериментальные данные и результаты расчетов приведены в табл. 2–4. Видно, что результаты, полученные для Sn, отличаются от теоретически рассчитанных [14] не более, чем на 30%.

Обращает на себя внимание тот факт, что теоретически рассчитанные сечения фотоионизации для энергий фотонов, равных моноэнергетическому эквиваленту (эффективной длине волны) полихроматического излучения вольфрама, совпадают в пределах 30% с экспериментально измеренными σ_{L_1} , σ_{L_2} , σ_{L_3} при 15 и 28 кВ на трубке. Это свидетельствует в пользу введения понятия «эффективная длина волны».

Численные значения сечений фотоионизации L -подоболочек для элементов второго большого периода получены впервые.

Литература

- [1] И. Н. Вишневский, В. И. Гаврилюк, А. А. Ключников, В. Т. Купришин, Г. Д. Латышев, Ю. В. Маковецкий, П. Н. Музалев, А. М. Феоктистов. Прикладная ядерная спектроскопия, 6, 132, Атомиздат, М., 1976.
- [2] K. E. Bergkvist. Ark. fysik, 27, 483, 1965.
- [3] V. I. Nefedov, N. P. Sergushin, I. M. Vand, M. V. Trzhaskovskaja. J. Electron. Spectr., 2, 383, 1973.
- [4] V. I. Nefedov, N. P. Sergushin, Y. V. Salyn, I. M. Vand, M. V. Trzhaskovskaja. J. Electron. Spectr., 7, 175, 1975.
- [5] М. Я. Амусья. Достижения спектроскопии. 18-й съезд по спектроскопии. Горький, 1977, ч. 1, 73, М., 1978.
- [6] А. З. Жмудский, А. С. Ерниязов, Л. М. Пакчанин, Л. П. Чесных, В. И. Шияновский. УФЖ, 5, 856, 1972.
- [7] М. А. Блохин. Физика рентгеновских лучей. ГИТТЛ, М., 1957.
- [8] М. А. Блохин, И. Я. Никифоров, И. И. Гегузин, А. В. Никольский, В. В. Илясов. Физика металлов и металловедение, 35, 743, 1973.
- [9] В. А. Немощкаленко, П. П. Шпак, В. П. Кривицкий. Физика металлов и металловедение, 39, 278, 1975.
- [10] S. I. Salem, P. L. Lee. At. data and Nucl. data tables, 18, 233, 1976.
- [11] J. McGuire. Phys. Rev. A, 5, 1043, 1972.
- [12] B. Crasemann, M. H. Chen, V. O. Kostroun. Phys. Rev., 4, 2161, 1971.
- [13] O. Keski-Rahkonen, M. O. Krause. At. data and Nucl. data tables, 14, 39, 1974.
- [14] R. H. Pratt, A. Ron, H. K. Tseng. Rev. of Mod. Phys., 45, 273, 1973.
- [15] J. H. Scofield. At. data and Nucl. data tables., 14, 121, 1974.
- [16] M. H. Chen, B. Crasemann, V. O. Kostroun. Phys. Rev., A, 4, 1, 1971.
- [17] B. Crasemann, M. H. Chen, V. O. Kostroun. Phys. Rev. A, 4, 2161, 1971.
- [18] А. И. Немец, Б. М. Гофман. Справочник по ядерной физике. «Наукова думка», Киев, 1975.

Поступило в Редакцию 11 марта 1980 г.