



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

6-2002-25

На правах рукописи

УДК 539.163

539.16.07

539.184.56

К-56

КОВАЛИК

Алойз

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ТОНКИХ
ЭФФЕКТОВ В СПЕКТРАХ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ
КОНВЕРСИОННЫХ И ОЖЕ-ЭЛЕКТРОНОВ,
ИСПУСКАЕМЫХ ПРИ РАСПАДЕ РАДИОНУКЛИДОВ**

Специальность: 01.04.16 — физика атомного ядра
и элементарных частиц

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем
им. В. П. Джелепова
Объединенного института ядерных исследований

Официальные оппоненты:

Доктор физико-математических наук,
профессор М.А. Листенгартен

Доктор физико-математических наук,
профессор Ю.П. Попов

Доктор физико-математических наук,
профессор А.И. Феоктистов

Ведущая организация:

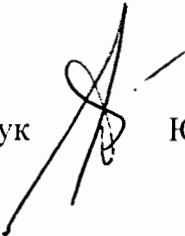
Институт ядерных исследований РАН, Троицк

Защита диссертации состоится “_____” _____ 2002 г.
на заседании диссертационного совета Д 720.001.03
Объединенного института ядерных исследований, г. Дубна
Московской области.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан “_____” _____ 2002 г.

Ученый секретарь совета
доктор физико-математических наук

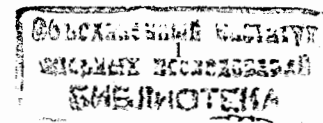

Ю.А. Батусов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Классическая ядерная бета-спектроскопия внесла существенный вклад в изучение не только структуры атомного ядра, но и атомных процессов, сопровождающих радиоактивный распад, таких как, например, переходы Оже. Некоторые из полученных результатов стали прямым или косвенным образом основой аналитических методов, широко применяемых в настоящее время на практике. Однако в спектрах электронов, сопровождающих радиоактивный распад, содержится значительно больше физической информации (в особенности об атомных процессах и о физико-химическом окружении радиоактивных атомов), чем этого удавалось получить методами классической ядерной бета-спектроскопии, позволявшими надежно изучать только высокоэнергетическую часть электронного спектра ($E_e > 20$ кэВ), не раскрывая при этом его тонких эффектов. Электростатические спектрометры предоставляют возможность исследовать спектры низкоэнергетических электронов при высоком приборном разрешении и тем самым выявлять тонкие особенности в их структуре. В результате открываются возможности применения прецизионной бета-спектроскопии и вне ядерной области.

Прецизионная спектроскопия низкоэнергетических конверсионных электронов высокого разрешения служит, по-видимому, на сегодняшний день единственным методом надежного поиска низкоэнергетических ядерных переходов. Применение гамма-спектроскопии усложнено трудностями, связанными, как с регистрацией низкоэнергетических гамма-квантов, так и с извлечением информации из измеренных спектров. Кроме того, низкоэнергетические ядерные переходы сильно конвертированы.

Под влиянием физико-химического окружения радиоактивных атомов могут изменяться не только энергии (в пределах нескольких эВ) линий конверсионных электронов (химические сдвиги), но и их интенсивности, а также количество линий в спектре. Таким образом, исследование этих эффектов открывает возможность не только получать информацию о валентном состоянии



радиоактивных атомов в источниках, об изменениях в *экранировании* заряда ядра (что в особенности важно для Мессбауэровской спектроскопии), но и изучать *основы* химической связи методами прецизионной спектроскопии низкоэнергетических электронов.

Безрадиационный процесс перестройки атомной оболочки, *эффект Оже*, изучен в значительно меньшей степени, чем конкурирующий с ним *радиационный* процесс. В настоящее время завершенной теории переходов Оже не существует. Экспериментальные данные о спектрах электронов Оже, возникающих в радиоактивном распаде, важны и для самой ядерной физики. С помощью оже-переходов изучаются процессы столкновений ионов с атомами, а также структура и динамика атомов и молекул. В последнее время привлекают к себе внимание оже-электроны из радиоактивного распада и в связи с их возможным применением для лечения некоторых раковых заболеваний. Требуются экспериментальные данные об интенсивностях и энергиях самых разных оже-переходов в подходящих изотопах.

Методы исследования состава и свойств поверхностей твердых тел, оже-электронная и оже-нейтрализационная спектроскопия, быстро развиваются и получают широкое применение. Расширение возможностей этих методов, в особенности последнего, зависит от накопления знаний о механизме безрадиационных переходов.

По всей видимости, *вероятности* переходов Оже являются *наиболее* чувствительными к деталям волновых функций среди других измеряемых атомных величин. Таким образом, исследование переходов Оже представляет собой чрезвычайно чувствительный метод изучения и самой структуры атома.

Переходам Оже *K-серии* принадлежит особое место среди всех безрадиационных переходов, так как они включают электроны атомных подоболочек в самых разных конфигурациях. Тем самым предоставляют широкие возможности для исследования самых разных эффектов в безрадиационном процессе перестройки атомной оболочки. Более того, *K-серия* наиболее доступна для экспериментального исследования, так как за крайне редким исключением,

наблюдать в *чистом* виде другие серии оже-переходов не удастся. Наиболее глубоко изучена самая простая по структуре и наиболее интенсивная *KLL-группа*. Однако, *детали* KLL-спектров, необходимые для дальнейшего развития теории, оставались в основном нераскрытыми из-за низкого уровня спектроскопической техники.

Исследование оже-переходов *L-серии* не менее важно для полного понимания эффекта Оже, чем исследование *K-переходов*. Тем не менее, *детальное* изучение спектров *L-оже* электронов в области средних и средне тяжелых элементов в принципе *не проводилось* из-за чрезвычайной сложности спектров.

Цель диссертации: Главная цель диссертации состояла в исследовании *тонких эффектов* в спектрах низкоэнергетических электронов, возникающих в радиоактивном распаде нуклидов. Это включало в себя:

- изучение *эффектов физико-химического окружения* в спектрах *конверсионных* и *оже-электронов*;
- изучение *деталей структуры* спектров *K-* и *L-оже* электронов в широком диапазоне атомных номеров для выявления роли различных эффектов в оже-переходах;
- поиск *низкоэнергетических ядерных переходов* методом спектроскопии конверсионных электронов.

Выполнение поставленной физической цели требовало разработки новых и дальнейшего развития существующих *методов прецизионной спектроскопии* низкоэнергетических электронов высокого разрешения с применением твердотельных радиоактивных бета-источников, которые включали в себя:

- энергетический анализ электронных спектров;
- приготовление радиоактивных бета-источников;
- обработку дискретных аппаратурных спектров.

Научная новизна работы заключается в следующем:

- **Развита** прецизионная спектроскопия низкоэнергетических электронов с применением *твердотельных* радиоактивных источников;
- Установлена *возможность* определения валентного состояния *следовых* количеств ^{99m}Tc в *твердотельных* образцах с помощью измерения *химических* сдвигов энергий конверсионных электронов;
- Проведены *систематические* экспериментальные исследования спектров KLL-, KLM+KLX-, KMM+KMX- и LMM+LMX-электронов Оже при высоком приборном разрешении в области атомных номеров $23 \leq Z \leq 69$, $23 \leq Z \leq 54$, $25 \leq Z \leq 36$ и $26 \leq Z \leq 70$, соответственно. Для большинства Z данные о структуре спектров получены *впервые*, для остальных существенно *уточнены*. KMM+KMX-переходы Оже в области легких атомов ранее никем *не исследовались*, а *детальный* анализ спектров L-оже электронов для средних и средне тяжелых элементов *не проводился*;
- *Впервые* экспериментально:
 - установлено влияние *способа* образования первичных вакансий на *абсолютные энергии* KLL- и LMM-переходов Оже;
 - выявлено влияние *физико-химического окружения* радиоактивных атомов на *энергии* ими испускаемых KLL-электронов Оже;
 - установлена *зависимость энергий* конверсионных и оже-электронов от *материала* подложки источника;
 - в области $32 \leq Z \leq 69$ однозначно подтверждено теоретическое предсказание о *сильном* влиянии *релятивистских эффектов* на *интенсивность* $\text{KL}_1\text{L}_2(^3\text{P}_0)$ -перехода Оже, опровергавшееся имевшимися ранее данными;
 - установлено влияние *промежуточной связи* на формирование *структуры* спектров KLM- и LMM-электронов Оже в области $23 \leq Z \leq 54$ и $54 \leq Z \leq 70$, соответственно;

- подтверждено влияние *взаимодействия* $\text{M}_3\text{M}_3(\text{J}=2)$ -, $\text{M}_1\text{M}_4(\text{J}=2)$ -, и $\text{M}_1\text{M}_5(\text{J}=2)$ -уровней на *перераспределение* интенсивности между некоторыми LMM-переходами Оже в области $Z \sim 60$.

Научная и практическая ценность работы:

- На базе пятикаскадного цилиндрического зеркального анализатора со спрямленным линией фокусов первого порядка построен и испытан макет электростатического *спектрографа*, который может стать основой *нового поколения* спектрометров для прецизионной спектроскопии низкоэнергетических электронов;
- Обнаруженный способ определения валентного состояния *следовых* количеств ^{99m}Tc в *твердотельных* образцах с помощью измерения *химических* сдвигов конверсионных линий открывает перспективу *новому высокочувствительному неdestructивному* аналитическому *методу* с возможным применением в области ядерной медицины и фармакологии;
- Выполненные исследования позволили получить *новые точные* данные о KLL-, KLM+KLX-, KMM+KMX- и LMM+LMX-переходах Оже в диапазоне атомных номеров $23 \leq Z \leq 70$. Тем самым существенно *расширен* экспериментальный материал по одному из важнейших в физике атома явлению – эффекту Оже;
- Обнаруженная *зависимость энергии* $\text{KL}_2\text{L}_3(^1\text{D}_2)$ -перехода Оже в ^{57}Fe от *физико-химического окружения* атомов ^{57}Fe открывает *новую* возможность исследования железосодержащих материалов;
- Полученные данные об энергиях и интенсивностях разных групп оже-переходов позволяют оценить возможность применения отдельных радиоизотопов для лечебных целей в ядерной медицине;
- Обнаруженные низкоэнергетические ядерные переходы позволили уточнить схемы распада изученных изотопов.

Личный вклад автора в работы, положенные в основу диссертации, состоял в постановке задачи, разработке программ исследования и их выполнении на всех этапах. Автором проведен анализ экспериментальных данных и результатов расчетов и на их основе сделаны обобщающие выводы.

На защиту выдвигаются следующие результаты:

1. **Методические разработки**, относящиеся к прецизионной спектроскопии низкоэнергетических электронов высокого разрешения с применением твердотельных радиоактивных бета-источников:
 - макет электростатического спектрографа;
 - приготовление бета-источников испарением в вакууме;
 - применение экспериментальной формы одиночной линии спектра в обработке аппаратурных спектров.
2. **Новый** неdestructивный метод определения валентного состояния *следовых* количеств ^{99m}Tc в *твердотельных* образцах с помощью измерения химических сдвигов энергий конверсионных электронов.
3. Совокупность новых экспериментальных данных об энергиях и относительных интенсивностях К- и L-переходов Оже, которые позволили осуществить проверку теоретических моделей и указать возможные пути их совершенствования.
4. Экспериментальные данные о влиянии релятивистских эффектов, эффектов промежуточной связи, взаимодействия уровней, способа образования первичной вакансии и физико-химического окружения на энергии и интенсивности К- и L-переходов Оже.
5. Результаты поиска введенных на основе баланса схем распада низкоэнергетических ядерных переходов в ^{158}Ho , ^{160}Ho и ^{204}Bi .

Апробация работы.

Основные результаты, изложенные в диссертации, докладывались на семинарах в Институте ядерной физики АНЧР (Ржеж под Прагой), Лаборатории

ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований (Дубна), Лаборатории метрологии ионизирующего излучения в Саклэ (Франция), в Центре ядерной и масс спектроскопии в Орсе (Франция) и в Институте физики Майницкого университета (Германия). Были представлены и докладывались на 36, 39, 40, 43, 47, 49, 50 и 51 Международной конференции по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра; Международной конференции о роли технеция в химии и ядерной медицине (Верона, Италия, 1986); Международной конференции об экзотических ядрах и атомных массах (Арлз, Франция, 1995); XI Международном семинаре "Точные измерения в ядерной спектроскопии" (Саров, Россия, 1996); Европейской конференции о прогрессе в ядерной физике и связанных с ней областях (Тэсалоники, Греция, 1997); Международном семинаре "Массы нейтрино в суб-эВ области" (Бад Либэнцэлл, Германия, 2001).

Публикации. По материалам диссертации опубликовано 40 работ в том числе 27 в международных журналах: J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena – 14, J. Phys. G – 4, Int. J. Appl. Radiat. Isot. – 3, J. Phys. B – 1, Physica Scripta – 1, Measurement Technique – 1, Nucl. Instrum. Methods – 1, Phys. Letters A – 1, Acta Physica Hungarica – 1.

Объем и структура диссертации. Диссертация состоит из введения, 3 глав и заключения, изложена на 282 страницах, включая 123 рисунка, 74 таблиц и список литературы из 300 наименований.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении кратко изложены основные моменты экспериментального исследования тонких эффектов в спектрах электронов, возникающих в радиоактивном распаде, в контексте развития спектроскопической техники. Дано краткое содержание диссертации по главам.

Первая глава посвящена обзору состояния на начало наших исследований теоретического и экспериментального изучения процесса *внутренней конверсии*

гамма-лучей и *переходов Оже*, которые, наряду с β -распадом, являются главными источниками электронов, сопровождающих радиоактивный распад.

Сначала приводятся основные понятия, определения и формулы теории внутренней конверсии, обсуждаются главные модели расчетов коэффициентов внутренней конверсии (КВК), различия в подходах, влияние разных эффектов на значения КВК, а также точность табличных КВК. Особое внимание уделено обсуждению влияния *физико-химического окружения* на процесс внутренней конверсии, в результате которого возникают *тонкие эффекты* в спектрах конверсионных электронов – изменения энергий и интенсивностей конверсионных линий, а также их *количества*.

Обсуждение исследования *эффекта Оже*, начинается с исторического введения, так как существенный вклад в экспериментальное исследование этого *фундаментального* атомного процесса внесли спектроскописты-ядерщики. Приводится классификация переходов Оже. Далее обсуждаются, обобщенно, основные расчеты энергий и вероятностей К-переходов Оже, приводятся выводы, полученные из сравнения, как результатов разных расчетов между собой, так и теории с экспериментом.

Вычисления вероятностей переходов Оже более сложные, чем вычисления их энергий, а уровень изучения интенсивностей переходов отличается для разных групп. Поэтому обсуждения проводятся по группам.

Наиболее глубоко изучена самая интенсивная и простая по структуре (9 линий) *KLL*-группа. Тем не менее, наблюдались расхождения между ширококомасштабными релятивистскими расчетами интенсивностей *KLL*-переходов в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций и экспериментальными данными для: а) *слабых* переходов в области легких атомов, б) в *распределении* интенсивности дублета *KL₁L₂* между его компонентами в области средних и тяжелых элементов. Вклад эффектов физико-химического окружения в некоторые наблюдаемые расхождения не исключен. Роль этих эффектов также обсуждается.

KLM-группа состоит в схеме промежуточной связи из 36 линий и ее суммарная интенсивность в лучшем случае не превышает 60% от интенсивности соответствующей *KLL*-группы. Спектр почти вырожден и его структура

практически не отличается от структуры в схеме *jj*-связи. Из-за экспериментальных трудностей на начало наших исследований *KLM*-группа была измерена всего для 9 элементов, из которых только один (*Ag*) находился в диапазоне $Z < 46$. Дается обзор имеющихся расчетов интенсивностей *KLM*-переходов.

Наиболее слабая и наиболее сложная из К-оже групп – группа *KMM+KMX*-переходов мало изучена, в особенности экспериментально. На начало наших исследований она была измерена лишь в области $Z > 46$ и всего для 6 элементов. Приводится обзор расчетов интенсивностей *KMM*-переходов Оже.

В конце первой главы обсуждается состояние дел в изучении *чрезвычайно сложных* спектров *L-оже* электронов, которые в области более тяжелых атомов состоят из нескольких сот переходов. В целом, из-за малочисленности и низкой точности, имевшихся экспериментальных данных, расчеты интенсивностей *LMM*-переходов Оже можно было проверять только качественно.

Вторая глава содержит описание экспериментальной техники и методов прецизионной спектроскопии низкоэнергетических электронов с применением твердотельных радиоактивных источников. Специфика исследований спектров низкоэнергетических электронов, в особенности спектров электронов Оже, состоит в том, что из-за их низкой энергии и интенсивности и высокой плотности линий, требования к характеристикам спектральной аппаратуры, качеству бета-источников и методам обработки измеренных спектров наиболее высоки.

Измерения проводились на двух одноканальных электростатических спектрометрах *ESA12* [1] (Институт ядерной физики АНЧР, Ржеж под Прагой, Чехия) и *ESA50* [2,3] (ЛЯП, ОИЯИ, Дубна).

ESA12 является двухкаскадным *цилиндрическим зеркальным анализатором (ЦЗА)* с фокусировкой второго порядка. Спектрометр работает в энергетическом диапазоне 0÷12 кэВ с относительным приборным разрешением 0.1÷1.0 % (в зависимости от ширины приемной щели анализатора). Электроны регистрируются беспороговым канальным умножителем электронов. Эффективная трансмиссия спектрометра в режиме без применения предварительного торможения электронов составляет ~0.4% от 4π.

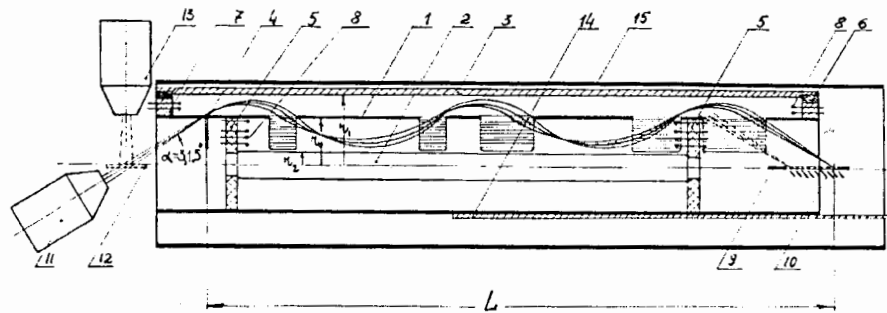


Рис.1. Эскиз макета электростатического *спектрографа* [4]: 1, 2, 3 – средний ($r_0=40$ мм), внутренний ($r_2=10$ мм) и внешний ($r_1=55$ мм) электроды, соответственно; 4 – входная щель; 8 – кольцевые электроды выравнивающего фокусирующее электростатическое поле потенциалов; 9 – приемная плоская диафрагма; 10 – координатно-чувствительный детектор; 11, 13 – электронная пушка; 15 – магнитная защита из μ -металла. Фокусное расстояние L составляет 502 мм.

Спектрометр *ESA50* является *комбинированным* спектрометром. Состоит из сферического замедлителя и двухкаскадного ЦЗА. Такая комбинация позволяет исключить влияние релятивистских эффектов на фокусировку электронов. В результате спектрометр может работать в энергетическом интервале $0 \div 50$ кэВ с абсолютным приборным разрешением несколько эВ. Трансмиссия спектрометра в случае наиболее часто применяемой моды измерения достигает $\sim 0.1\%$ от 4π . Для регистрации электронов применяется также каналный умножитель.

В этой главе описывается довольно подробно и принцип работы ЦЗА, а также влияние разных эффектов на его приборное разрешение.

Главным недостатком ЦЗА является его низкая трансмиссия. С целью ее повышения на $1 \div 2$ порядка была предпринята попытка создать электростатический спектрометр *нового поколения*. В результате разработан, построен и испытан [4] макет пятикаскадного ЦЗА со *спрямлением линии фокусов первого порядка*, работающий в режиме *спектрографа*. Спектрометр состоит из *трех* соосных цилиндрических электродов (см. рис. 1). При работе, средний электрод (1) заземлен, а на внутренний (2) и наружный (3) отклоняющие электроды подается один и тот же отклоняющий потенциал. Результаты

испытания макета показали, что анализатор позволяет проводить *одновременную* регистрацию энергетического интервала, составляющего 11.5% от энергии проходящего спектрографом центрального пучка электронов. Это эквивалентно увеличению трансмиссии более чем на *один порядок* по сравнению со спектрометрами *ESA12* и *ESA50*. Однако полученное приборное разрешение 0.6% недостаточно для решения современных задач. Его улучшение можно ожидать при воплощении спрямления линии фокусов второго порядка и/или при применении системы предварительного торможения электронов.

Основным параметром *качества* бета-источника является его *эффективная толщина*, которая не должна существенно превышать среднюю длину свободного пробега для неупругого рассеяния электронов в материале источника, так как неупруго рассеянные электроны участвуют в образовании низкоэнергетических “хвостов” линий спектра. Для электронов с энергией в единицы кэВ она составляет всего *несколько нм*. Поэтому требуется высокая удельная активность радиоизотопа и его равномерное распределение по поверхности подложки бета-источника.

Разработаны *два метода* приготовления тонких бета-источников – метод *испарения в вакууме* и *модифицированный метод* [5,6] Лэнгмюр-Блуджетта (ЛБ).

Первый из методов является двухстадийным. Сначала исходный радиоактивный материал наносится электролизом на испаритель из Ta. Вторая стадия начинается с предварительного прогрева в вакууме испарителя с нанесенной на него активностью, после чего испаряется активность. При этом подложка бета-источника вращается со скоростью ~ 2000 оборотов в минуту. В большинстве случаев температурные зависимости десорбции следовых количеств изучаемых изотопов с поверхности поликристаллического тантала не были известны, и поэтому нам пришлось их определять. Метод довольно трудоемкий и его эффективность низкая (несколько процентов).

Модифицированный метод ЛБ отличается от стандартного метода тем, что хемосорбция катионов проводится с капли раствора, содержащего радионуклид,

на мономолекулярный слой ЛБ толщиной 2.5 нм *заранее* нанесенный на твердотельную подложку бета-источника. В случае редкоземельных элементов эффективность метода достигала 80÷90%. Приготовленные бета-источники стабильные в вакууме и на воздухе. Метод позволяет *контролируемым* образом увеличивать активность бета-источника повторным нанесением нескольких радиоактивных мономолекулярных слоев ЛБ друг на друга. Применимость такого подхода продемонстрирована в случае изотопа ^{169}Yb на примере конверсионных линий $M_1-8.4$ ($E_c=6.1$ кэВ) и $L_1-20.7$ ($E_c=10.6$ кэВ).

Надежность обработки дискретных спектров электронов напрямую связана с надежностью применяемой в обработке *формы одиночной линии* спектра. Вычислить ее с достаточной точностью трудно в основном из-за нехватки полной информации об источнике, хотя результаты последнего времени обнадеживают. Нами применялись программы с использованием, как *аналитической* формы линии (многопараметрическая Гауссиан подобная функция), так и (что имело место в подавляющем большинстве случаев) *экспериментальной* [7]. Основным *преимуществом* второго подхода является физическая обоснованность формы, возможность закладывать в обработку больше физической информации и однозначная физическая интерпретация параметров подгонки. В качестве *стандартной линии* выбирается наиболее узкая и хорошо изолированная линия измеренного спектра. Такая стандартная линия содержит в себе, как особенности фокусирующих свойств спектрометра, так и эффекты источника. При обработке форма отдельной линии спектра вычисляется как *свертка* стандартной линии с *Лоренцианом*, ширина которого равна разнице их естественных ширин.

Разработанная нами экспериментальная техника и методы исследования создали *уникальные* возможности для прецизионных исследований спектров низкоэнергетических электронов, не имеющих аналога в мире.

В третьей главе приводятся результаты наших исследований *тонких эффектов* в спектрах низкоэнергетических электронов, сопровождающих радиоактивный распад, и их обсуждение. К ним относим эффекты физико-

химического окружения в спектрах конверсионных и оже-электронов, детали структуры спектров KLL-, KLM+KLX-, KMM+KMX- и LMM+LMX-электронов Оже, а также поиск конверсионных линий низкоэнергетических ядерных переходов.

Обнаружить *эффекты физико-химического окружения* в спектрах конверсионных электронов очень сложно из-за их *малой* относительной величины. По-видимому, наиболее перспективным путем является исследование изменений энергий конверсионных электронов, т.п. *химических сдвигов*. Ранее в конверсионном спектре изомерного перехода 2.17 кэВ E_3 в ^{99m}Tc ($T_{1/2}=6$ ч.) наблюдались *химические* сдвиги при применении твердотельных образцов, содержащих *микрограммовые* количества *носителя* ^{99g}Tc ($T_{1/2}=2\times 10^5$ л.) с *примесью* следовых количеств ^{99m}Tc . Природа ^{99m}Tc , возникающего в условиях *без носителя*, представляет *особый* интерес для химии технеция. Но методов для исследования *твердотельных* образцов очень мало в отличие от возможностей исследования жидких образцов. Поэтому нами изучалась возможность применения прецизионной спектроскопии конверсионных электронов для определения валентного состояния *следовых* количеств ^{99m}Tc ($\sim 10^{-11}$ г) в *твердотельных* образцах. Исследования проводились на спектрометре ESA12 при приборном разрешении <1 эВ. Измеренные [8] химические сдвиги энергий связи электронов на $M_{4,5}$ -подоболочках технеция для основных соединений, $\Delta E_B(\text{NH}_4^{99m}\text{TcO}_4 - ^{99m}\text{Tc})$ и $\Delta E_B(\text{NH}_4^{99m}\text{TcO}_4 - ^{99m}\text{TcO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O})$, составляли (6.3 ± 0.4) и (3.6 ± 0.4) эВ, соответственно. На основании полученных тестовых результатов успешно изучен [9-12] широкий набор твердотельных образцов ^{99m}Tc *без носителя* в разной химической форме (см. рис. 2), включая окислы, галонидные комплексы, а также хелаты, которые применяются в ядерной медицине для диагностики. В таблице 1 приводятся наши данные для некоторых соединений. В результате были заложены основы *нового неdestructивного метода* определения валентного состояния *следовых* количеств ^{99m}Tc в твердотельных образцах.

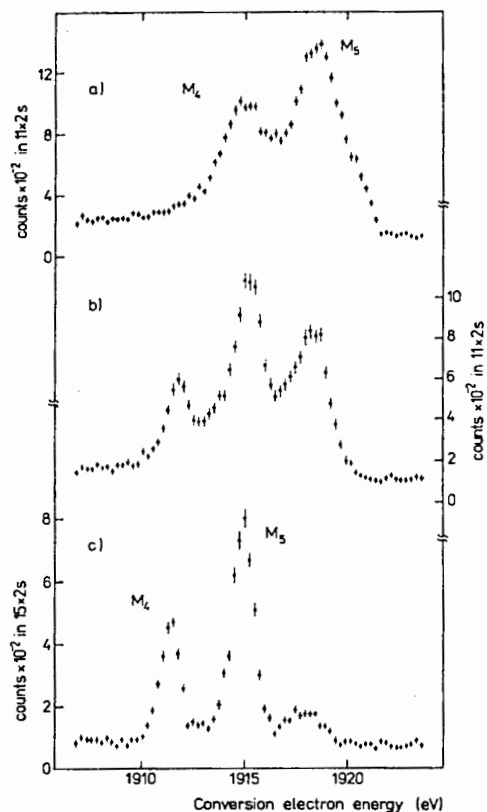


Рис. 2. Конверсионные линии $M_{4,5}$ - 2.17 ^{99m}Tc при изменении химического состава того же источника [8]: а) исходная форма (в основном $^{99m}\text{TcO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$); б) после частичного окисления (смесь $^{99m}\text{TcO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ и $\text{NH}_4^{99m}\text{TcO}_4$); в) после сильного окисления (в основном $\text{NH}_4^{99m}\text{TcO}_4$).

^{57}Fe , которая уменьшилась на $\sim 30\%$ после выдержки на воздухе в течение нескольких недель источника ^{57}Co на Al-подложке. При этом взаимные расстояния между конверсионными линиями $M_{4,5}N$ -14.4 не изменялись в пределах экспериментальной ошибки 0.3 эВ. Почти на одинаковую величину уменьшились и интенсивности линий $KL_{2,3}(M_{4,5}N_1)$ -электронов Оже ^{57}Fe , причем изменение в положениях этих линий также не наблюдалось.

При исследовании [13,14] твердых источников ^{83}Rb обнаружено увеличение энергий конверсионных линий переходов 9.4 и 32.1 кэВ в дочернем ^{83m}Kr на $14 \div 19$ эВ ($6 \div 9 \sigma$) по сравнению с вычисленными значениями с использованием энергий переходов и энергий связи электронов в свободных атомах Kr, известных с точностью единиц эВ и < 1 эВ, соответственно. Расхождение является свидетельством о *существенном влиянии твердых эффектов на энергии связи электронов в атомах Kr, возникающих в твердом источнике.*

Наблюдено [15] влияние физико-химического окружения на *интенсивность конверсионной* линии валентных $M_{4,5}N_1$ -электронов перехода 14.4 кэВ в

Таблица 1. Экспериментальные данные [12] о химических сдвигах конверсионных линий M_4 - и M_5 - 2.17 ^{99m}Tc для разных химических соединений технеция относительно $\text{NH}_4^{99m}\text{TcO}_4$. Ошибка в определении сдвигов составляет ± 0.2 эВ. В первом и третьем столбцах приводятся методы приготовления исследуемых образцов и валентное состояние ^{99m}Tc в них, соответственно.

Method of sample preparation	Observed chemical shifts (eV)	Tc valency in compound
$^{99m}\text{TcO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} + \text{HNO}_3$ vapours, neutralized by NH_3	0.0 — — —	$\text{NH}_4\text{Tc(VII)O}_4$
$^{99m}\text{TcO}_4^-$ in Na_2CO_3 solution, extracted by MEK	0.0 — — —	NaTc(VII)O_4
$^{99m}\text{TcO}_4^-$ in K_2CO_3 solution, extracted by MEK	0.0 — — —	KTc(VII)O_4
$^{99m}\text{TcO}_4^-$ in 3M KOH, electrolysis	— — 3.6 —	$\text{Tc(IV)O}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
$\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ in solid NaOH, equilibrated in air	0.0 — — —	NaTc(VII)O_4
$\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ in solid NaOH, equilibrated in vacuum	0.0 2.1 — —	NaTc(VII)O_4 NaTc(V)O_3
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{citric acid} + \text{Sn}^{2+}$, pH 3, incubated 20 min in N_2	— — — 4.1	Tc(III) citr_2
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{citric acid} + \text{Sn}^{2+}$, pH 6, incubated 20 min in N_2	— 1.9 — —	Tc(V) citr_2
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{DTPA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 3, incubated 20 min in N_2	— 2.1 — 4.3	Tc(V) DTPA Tc(III) DTPA
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{DTPA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 6, incubated 20 min in N_2	— — 3.2 —	Tc(IV) DTPA
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{EDTA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 3, incubated 45 min in N_2	— — 3.6 —	Tc(IV) EDTA
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{EDTA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 3, incubated 20 min in N_2	— 1.9 — —	Tc(V) EDTA
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{EDTAHA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 6, incubated 45 min in air	— — 3.3 —	Tc(IV) EDTAHA
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{EDTAHA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 6, incubated 20 min in air	— 1.8 — —	Tc(V) EDTAHA
$^{99m}\text{TcO}_4^- + \text{EDTAHA} + \text{Sn}^{2+}$, pH 0.8, incubated 45 min in air	— 1.8 — —	Tc(V) EDTAHA

KLL-группа оже-электронов изучена для 15 элементов, возникающих в *электронном захвате*, в диапазоне $23 \leq Z \leq 69$, а именно: $^{51}_{23}\text{V}$ [16], $^{54}_{24}\text{Cr}$ [16], $^{55}_{25}\text{Mn}$ [17], $^{57}_{26}\text{Fe}$ [15,18], $^{73}_{32}\text{Ge}$ [19], $^{75}_{33}\text{As}$ [20], $^{83}_{36}\text{Kr}$ [7,21], $^{103}_{45}\text{Rh}$ [22], $^{111}_{48}\text{Cd}$ [23], $^{131}_{54}\text{Xe}$ [24,25], $^{140}_{59}\text{Pr}$ [26], $^{145}_{61}\text{Pm}$ [26], $^{155}_{64}\text{Gd}$, $^{159}_{65}\text{Tb}$ [27] и $^{169}_{69}\text{Tm}$ [28]. Исследования для $Z=24, 32, 36, 45, 59, 61$ и 64 проведены *впервые*, для остальных элементов спектры анализированы более *детально* и получены более *точные* данные, по сравнению с работами других авторов.

Преобладающая точность $1 \div 3$ эВ в определении, как *относительных*, так и *абсолютных* (см. табл. 2) энергий KLL-переходов позволила проверить на

Таблица 2. Сравнение измеренных в этой работе абсолютных энергий (в эВ) $\text{KL}_2\text{L}_3(^1\text{D}_2)$ -оже перехода в изучаемых изотопах с полуэмпирическими значениями.

Изотоп	Эксперимент (эта работа)	Теория	Эксп. – Теор. (эВ)	Эксп. – Теор. (σ)
$^{54}_{24}\text{Cr}$	4794 ± 4	4777.8	$+ (16.2 \pm 4.0)$	4.1
$^{55}_{25}\text{Mn}$	5202.5 ± 2.5	5191.7	$+ (10.8 \pm 2.5)$	4.3
$^{57}_{26}\text{Fe}$	5640.2 ± 1.0 [15]	5624.8	$+ (15.4 \pm 1.0)$	15
$^{73}_{32}\text{Ge}$	8567.4 ± 1.1	8561.5	$+ (5.9 \pm 1.1)$	5.4
$^{83}_{36}\text{Kr}$	10837.4 ± 1.0	10824.9	$+ (12.5 \pm 1.0)$	13
$^{103}_{45}\text{Rh}$	16958.1 ± 2.1	16945.3	$+ (12.8 \pm 2.1)$	6.1
$^{111}_{48}\text{Cd}$	19319.2 ± 1.4	19308.1	$+ (11.1 \pm 1.4)$	7.9
$^{131}_{54}\text{Xe}$	24519.1 ± 1.9 [24] 24521.6 ± 2.0 [25]	24510.1	$+ (9.0 \pm 1.9)$ $+ (11.5 \pm 2.0)$	4.7 5.8
$^{140}_{58}\text{Ce}$	28397 ± 3	28376.4	$+ (20.6 \pm 3.0)$	6.9
$^{140}_{59}\text{Pr}$	29423.1 ± 2.6	29402.9	$+ (20.2 \pm 2.6)$	7.8
$^{145}_{61}\text{Pm}$	31524.6 ± 1.8 * 31542.9 ± 1.5 **	31521.1	$+ (3.5 \pm 1.8)$ $+ (21.8 \pm 1.5)$	1.9 15
$^{155}_{64}\text{Gd}$	34866.8 ± 2.5	34862.9	$+ (3.9 \pm 2.5)$	1.6
$^{159}_{65}\text{Tb}$	36044 ± 3	36023.3	$+ (20.7 \pm 3.0)$	6.9
$^{169}_{69}\text{Tm}$	40909 ± 3 * 40929 ± 3 **	40901.7	$+ (7.3 \pm 3.0)$ $+ (27.3 \pm 3.0)$	2.4 9.1

* Низкоэнергетическая компонента линии $\text{KL}_2\text{L}_3(^1\text{D}_2)$.

** Высокоэнергетическая компонента линии $\text{KL}_2\text{L}_3(^1\text{D}_2)$.

большом наборе атомных номеров широко применяемые *полуэмпирические* расчеты *энергий* оже-переходов Ларкинса (1977). Их декларированная точность составляет $1 \div 2$ эВ для случаев, когда известны точные значения энергий связи электронов и не хуже 5 эВ вообще. Из сравнения этих расчетов с нашими данными сделаны два основных вывода:

- Во всех случаях *расчетные* значения *абсолютных* энергий доминирующего перехода $\text{KL}_2\text{L}_3(^1\text{D}_2)$ *систематически ниже* измеренных на $6 \div 27$ эВ, ($4 \div 15$ σ; см. табл. 2). При этом среднее значение разницы в области $24 \leq Z \leq 48$ составляло 12 эВ, а в области $58 \leq Z \leq 69$ (редкоземельные элементы) 22 эВ. На основании экспериментальных данных (и других авторов), а также результатов некоторых расчетов, сделан вывод о том, что наблюдаемое *систематическое* расхождение расчетов с экспериментом вызвано *способом* образования первичной К-вакансии, т.е. *электронным захватом*. В случае $^{145}_{61}\text{Pm}$ и $^{169}_{69}\text{Tm}$ *впервые* наблюдается *дублетная* структура *одиночных* линий KLL-спектра, что подтверждает сделанный вывод. Абсолютные энергии *низкоэнергетических* “компонентов” этих линий (связанных с К-конверсией) хорошо согласуются с вычисленными значениями, а высокоэнергетических завышены на выше приведенные величины (см. табл. 2). Таким образом, полученные нами результаты указывают на *неприменимость* в расчетах энергий KLL-переходов предположения о *независимости* эмиссии оже-электрона от *предыстории* образования первичной К-вакансии в случае *электронного захвата*.

Ранее наблюдались сдвиги энергий X-лучей величиной от долей эВ до нескольких эВ в некоторых случаях, когда первичные вакансии образовались в результате *электронного захвата*. Было введено понятие *эффект атомной структуры*, который отражает влияние разницы атомной структуры двух соседних элементов на *радиационные* переходы. Эффект пока полностью не изучен.

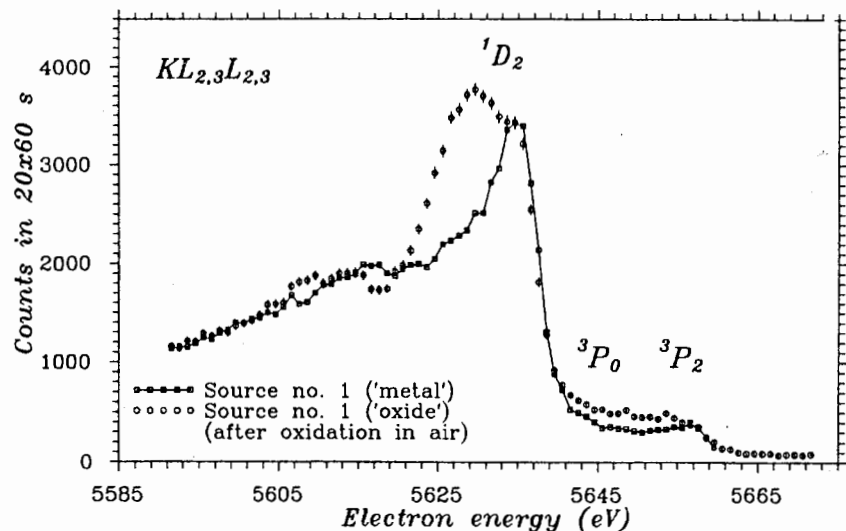


Рис. 3 Группа $KL_{2,3}L_{2,3}$ -линий оже-электронов ^{57}Fe , измеренная [15] с шагом 1 эВ при приборном разрешении 2.5 эВ с источником ^{57}Co сразу после его приготовления (обозначенный как "металл" - прямоугольнички) и после его выдержки на воздухе в течение нескольких недель (обозначенный как "окись" - кружки).

• В расчетах KLL-линии *систематически* смещены ближе к доминирующей линии $KL_2L_3(^1D_2)$, чем наблюдается в экспериментах. В особенности это касается линии $KL_2L_2(^1S_0)$, где разница составляет несколько эВ для легких элементов, с ростом Z увеличивалась, а для $Z=69$ она достигает значения (25.0 ± 3.0) эВ. Систематический характер смещения свидетельствует о том, что оно не может быть вызвано неточностью используемых в расчетах экспериментальных энергий связи электронов.

В случае ^{55}Mn и ^{57}Fe обнаружен низкоэнергетический *спутник* линии $KL_2L_3(^1D_2)$ на расстоянии (8.2 ± 0.5) и (6.2 ± 0.5) эВ, соответственно. Для ^{57}Fe наблюдалась и *динамика* изменения интенсивности спутника при хранении на воздухе источника материнского изотопа ^{57}Co (см. рис. 3). Проведенные исследования [29] широкого набора источников ^{57}Co с применением и мессбауэровской спектроскопии выявили *корреляцию* интенсивности спутника с количественным содержанием ^{57}Fe в степени окисления 2^+ в источниках. Причину

образования спутников пока не удалось полностью определить. В любом случае линия $KL_2L_3(^1D_2)$ -оже электронов ^{57}Fe является *чувствительным индикатором* присутствия в образцах *следовых* количеств двухвалентного железа, а электронная спектроскопия высокого разрешения может стать очень *эффективным методом* их исследования.

Наблюдены [29] зависящие от *материала* подложки *сдвиги энергий*, как $KL_2L_3(^1D_2)$ -оже электронов ^{57}Fe , так и линий конверсионных электронов ядерного перехода 14.4 кэВ в ^{57}Fe , которые были одинаковыми в пределах экспериментальных ошибок. При переходе от алюминия, окисленного естественным путем, к углероду энергии увеличились на 1.35(15) эВ, а при переходе от углерода к платине еще на 0.55(15) эВ. Более того, энергии уменьшились на 1.0(2) эВ после хранения на воздухе источника на Al-подложке. По нашим сведениям такого рода сдвиги наблюдаются в электронной спектроскопии с радиоактивными источниками *впервые*, и они могут быть одним из источников систематических ошибок при определении с высокой точностью абсолютных энергий, как конверсионных, так и оже-электронов.

На начало наших исследований серьезной проблемой являлось описание *распределения* интенсивности дублета KL_1L_2 между его компонентами 1P_1 и 3P_0 . В области $Z < 45$ все существующие теории, как нерелятивистские, так и релятивистские, предсказывали заметно завышенную интенсивность 1P_1 -компонента по отношению к результатам ранее проведенных экспериментов. Результаты наших измерений в области $23 \leq Z \leq 48$ подтверждают, что "традиционная" теория, основана на схеме промежуточной связи и учитывающая только взаимодействие $(2s)^0(2p)^6$ и $(2s)^2(2p)^4$ конфигураций электронов в конечном состоянии атома, завышает интенсивность перехода $KL_1L_2(^1P_1)$ на $3 \div 6 \sigma$. Более того, и перехода $KL_1L_1(^1S_0)$ на $6 \div 9 \sigma$, но только для $Z=23, 24, 25$ и 26 . Нами было показано в случае ^{55}Mn , что перераспределение интенсивностей "традиционных" расчетов в соответствии с результатами "специальных" расчетов (учитывающих широкий набор корреляционных эффектов) существенно улучшает согласие с нашими данными. Это может свидетельствовать о том, что

роль корреляционных эффектов сверх взаимодействия выше приведенных конфигураций недооценена в исследованной нами области низких Z .

“Традиционная” теория предсказывает *резкий рост* интенсивности компонента $KL_1L_2(^3P_0)$ с ростом Z (см. рис. 4) в результате вклада запаздывающего ток-токового взаимодействия. Если в области $Z < 55$ расчетное отношение интенсивностей компонентов $KL_1L_2(^3P_0)/(^1P_1)$ как-то согласовалось с *немногочисленными* экспериментальными данными, то с ростом Z наблюдалось *стремительно нарастающее расхождение*. Причину в основном искали в *теории*.

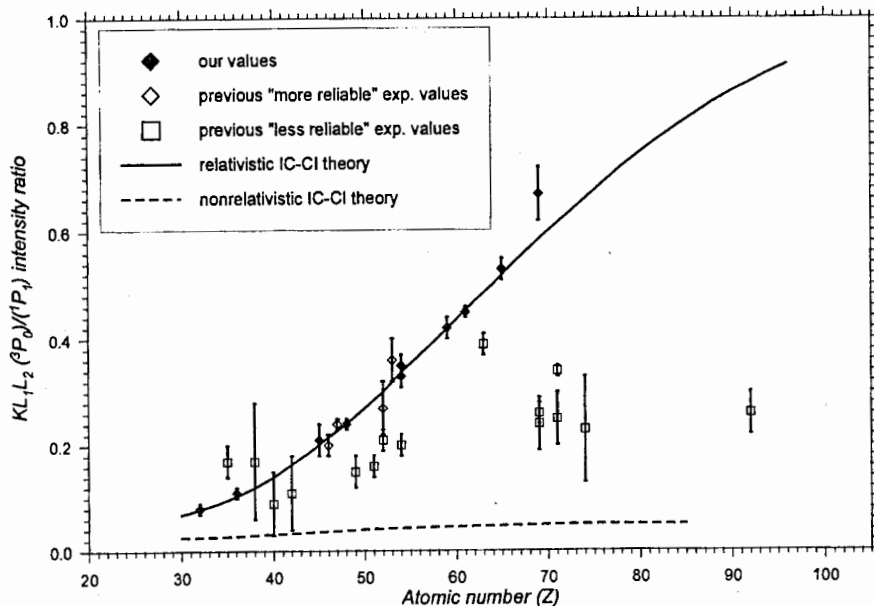


Рис. 4. Сравнение экспериментальных значений отношения интенсивностей 3P_0 - и 1P_1 -компонентов дублета KL_1L_2 с результатами, как релятивистских расчетов (сплошная линия) в схеме промежуточной связи (IC) с учетом взаимодействия $(2s)^0(2p)^6$ и $(2s)^2(2p)^4$ конфигураций (CI) электронов в конечном состоянии атома, так и нерелятивистских расчетов IC-CI (пунктирная линия). **Наши данные – полные ромбы.** Пустыми ромбами обозначены результаты других авторов, полученные из полностью или частично разрешенных дублетов (“more reliable” values), а прямоугольниками значения, извлеченные из неразрешенных дублетов (“less reliable” values).

Нами проведено *систематическое* исследование дублета KL_1L_2 для *десятки* элементов в области $32 \leq Z \leq 69$, а именно для $Z=32, 33, 36, 45, 48, 54, 59, 61, 65$ и 69 . Задача усложнена тем, что в области средних и тяжелых элементов естественные ширины компонентов дублета с ростом Z увеличиваются быстрее, чем его расщепление. Как видно из рис. 4, во всех нами исследованных случаях наблюдается *удивительно хорошее согласие* теории с экспериментом. Таким образом, *впервые подтверждена* решающая роль релятивистских эффектов при формировании интенсивности $KL_1L_2(^3P_0)$ -перехода. “Загадка” почти 20-летней истории разрешена.

36 переходов *KLM-спектра* в схеме промежуточной связи образует 15 мультиплетов, десять из которых дублеты, остальные имеют более сложную структуру. Ожидаемое расстояние между крайними компонентами мультиплетов мало по сравнению с естественными ширинами компонентов и в случае KL_3M_3 -квартета, который характеризуется *наибольшим энергетическим расщеплением* среди всех мультиплетов спектра. На начало наших исследований, даже в лучших экспериментах по изучению KLM-переходов наблюдать структуру мультиплетов *не удавалось*.

Нами *детально* изучены спектры KLM+KLX-электронов Оже для *девяти* элементов, возникающих в *электронном захвате*, в диапазоне $23 \leq Z \leq 54$: $^{51}_{23}V$ [16], $^{54}_{24}Cr$ [16], $^{55}_{25}Mn$ [17], $^{57}_{26}Fe$ [15,18,30], $^{73}_{32}Ge$ [31], $^{75}_{33}As$ [20], $^{83}_{36}Kr$ [7,21], $^{111}_{48}Cd$ [23] и $^{131}_{54}Xe$ [25]. Как видно из списка, особое внимание уделено *не изучавшейся* до нас области $Z < 46$. Спектры для $Z=48$ и 54 изучены существенно *более детально*, чем в предыдущих работах. В качестве примера на рис. 5 показан спектр $^{111}_{48}Cd$.

Преобладающая точность в определении, как *относительных*, так и *абсолютных* энергий KLM+KLX-переходов составляла 1 ± 2 эВ, что позволило проверить *полуэмпирические* расчеты Ларкинса. Обнаружено, что расчетные *относительные* энергии KLM-переходов *соответствуют* экспериментальным в пределах 3σ для подавляющего большинства случаев. Но измеренные

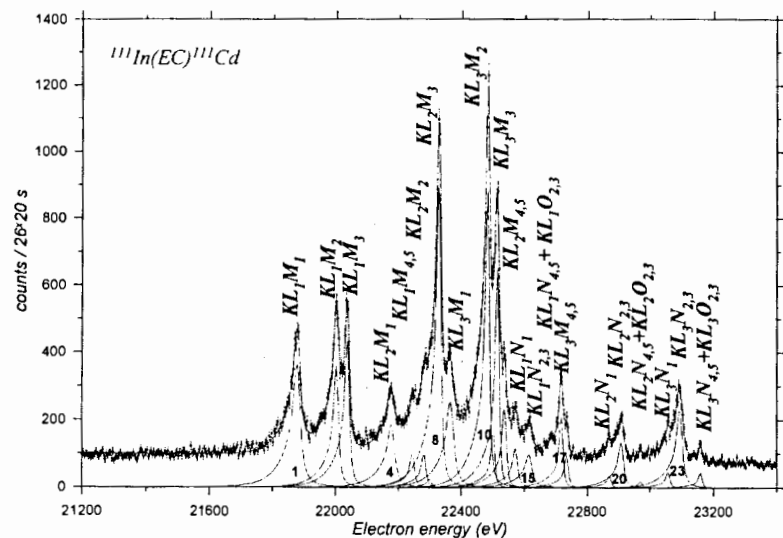


Рис. 5. Спектр KLM+KLX-электронов Оже ^{111}Cd [23], измеренный при приборном разрешении 7 эВ с шагом 4 эВ. Компоненты спектра, полученные в обработке, показаны сплошными линиями.

абсолютные энергии доминирующих линий KLM-спектра *выше* полуэмпирических на $4 \div 16$ эВ ($2 \div 9 \sigma$). Несогласие может быть вызвано эффектом атомной структуры. В случае ^{83}Kr и ^{131}Xe существенный вклад в расхождение явно вносят и *твердотельные эффекты*, которые в расчетах для *свободных атомов* не учитывались.

Доказано *влияние* эффектов *промежуточной связи* на *структуру* KLM-спектров вплоть до $Z=54$ тремя способами: а) из анализа *формы* некоторых линий спектра, б) выделением *впервые* некоторых *компонентов*, предсказанных теорией промежуточной связи, в) из поведения отношения интенсивностей групп линий $\text{KL}_3\text{M}_{2,3}/\text{KL}_2\text{M}_{2,3}$.

В области $Z \sim 25$ проведено *обширное* и *детальное сравнение* предсказанной теорией промежуточной связи и наблюдаемой нами формы группы $\text{KL}_{2,3}\text{M}_{2,3}$ -линий и констатируется их *хорошее согласие*. В случае ^{83}Kr наряду с этим анализируется еще и форма линий $\text{KL}_2\text{M}_{4,5}$ и $\text{KL}_3\text{M}_{4,5}$. Указывается на то, что без учета *мультиплетности* некоторых линий нельзя извлечь из измеренных

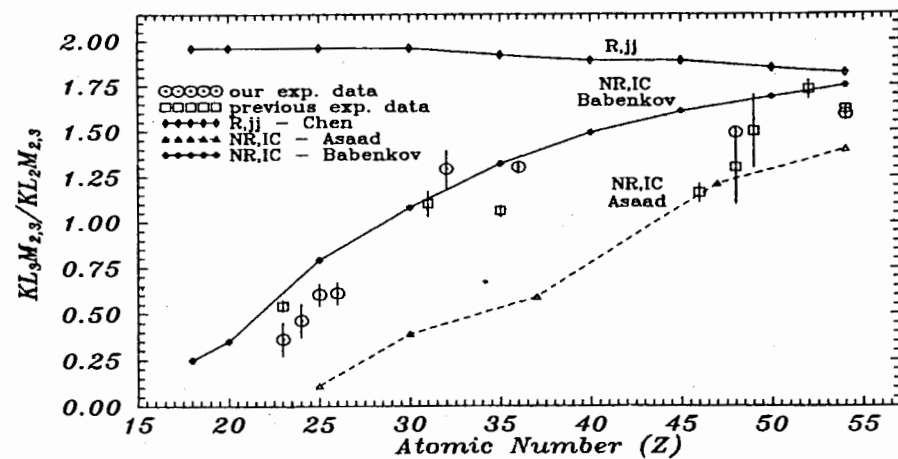


Рис. 6. Сравнение экспериментальных значений отношения интенсивностей групп оже-линий $\text{KL}_3\text{M}_{2,3}/\text{KL}_2\text{M}_{2,3}$ (кружки – наши данные, прямоугольники – результаты других авторов) с нерелятивистскими расчетами в схеме промежуточной связи (NR,IC) и релятивистскими расчетами в схеме jj-связи (R,jj).

спектров *правильную* информацию об их интенсивностях. В спектре ^{131}Xe подробно анализируется и группа линий $\text{KL}_2\text{M}_2 + \text{KL}_1\text{M}_{4,5}$.

Компоненты линий, предсказанные теорией *промежуточной связи*, выделены в спектрах ^{83}Kr ($\text{KL}_1\text{M}_1(^1\text{S}_0, ^3\text{S}_1)$), ^{111}Cd ($\text{KL}_2\text{M}_2(^1\text{S}_0, ^3\text{P}_1)$, $\text{KL}_3\text{M}_3(^3\text{P}_0, ^3\text{D}_2)$) и ^{131}Xe ($\text{KL}_1\text{M}_1(^1\text{S}_0, ^3\text{S}_1)$, $\text{KL}_3\text{M}_3(^3\text{P}_0, ^3\text{D}_2)$, $\text{KL}_3\text{M}_1(^3\text{P}_1, ^3\text{P}_2)$).

Полученное в приближении промежуточной связи *распределение интенсивности* между KLM-линиями, принадлежащими общей конфигурации, может *заметно отличаться* от предсказания в схеме jj-связи, особенно в нижней половине Периодической системы. В наиболее корректной форме отклонения могут быть выявлены при исследовании отношения интенсивностей групп “нерелятивистских” переходов $\text{KL}_2\text{M}_{2,3}$ и $\text{KL}_3\text{M}_{2,3}$ (см. рис. 6), которые, более того, могут быть *разрешены* и в области *легких атомов*. Как видно из рис. 6, измеренные значения *согласуются* с результатами нерелятивистских расчетов в модели промежуточной связи для *всех* изученных нами девяти элементов (расчеты Асада являются менее точными, чем Бабенкова), но отличаются от

релятивистских расчетов в схеме jj -связи на $6\div 34 \sigma$. Это свидетельствует о *заметном влиянии промежуточной связи на интенсивности KLM-переходов вплоть до $Z=54$.*

Спектры $KMM+KMX$ -электронов Оже характерны *высокой плотностью и очень низкой интенсивностью*. Суммарная интенсивность KMM -группы на $1\div 2$ порядка ниже интенсивности соответствующей KLL -группы, а суммарная интенсивность всех $KMX+KXY$ -переходов еще на порядок меньше. Согласно теории промежуточной связи, полная KMM -группа состоит из 35 переходов. В области $Z < 46$ спектры $KMM+KMX$ -электронов Оже экспериментально *не изучались*.

Вопреки мнению, что *детальное* экспериментальное исследование KMM -спектров в *легких* атомах с применением твердотельных радиоактивных источников практически *неосуществимо*, нами такие исследования проведены не только для $^{83}_{36}\text{Kr}$ [7] (см. рис. 7), но и для более легких элементов $^{57}_{26}\text{Fe}$ [15,18] (см. рис. 8) и $^{55}_{25}\text{Mn}$ [16]. Измеренные спектры разрешены заметно лучше, чем для атомов с $Z \geq 46$ несмотря на то, что взаимные расстояния между линиями в спектрах Fe и Kr в несколько раз меньше. В случае $^{83}_{36}\text{Kr}$ исследована и KMN -группа, которую до нас удалось изучить лишь для *двух* элементов ($Z=46,54$). Измерена также доминирующая линия $KM_2M_3(^1D_2)$ -оже электронов для $^{103}_{45}\text{Rh}$, $^{111}_{48}\text{Cd}$ и $^{131}_{54}\text{Xe}$. Измеренные *абсолютные* энергии $KM_2M_3(^1D_2)$ -линии *выше* полуэмпирических значений на $7.1\div 15.8$ эВ ($2\div 5 \sigma$) в случаях, когда эта линия достаточно хорошо разрешена ($^{83}_{36}\text{Kr}$, $^{103}_{45}\text{Rh}$, $^{111}_{48}\text{Cd}$, $^{131}_{54}\text{Xe}$). Наблюдаемое различие может быть вызвано эффектом атомной структуры, так как все изученные изотопы возникали в электронном захвате. *Полуэмпирические положения* KMM -и KMN -линий относительно $KM_2M_3(^1D_2)$ -перехода хорошо согласуются с измеренными только для $^{83}_{36}\text{Kr}$. В случае $^{55}_{25}\text{Mn}$ и $^{57}_{26}\text{Fe}$ для всех линий полуэмпирического спектра наблюдается *систематический сдвиг* величиной ~ 9

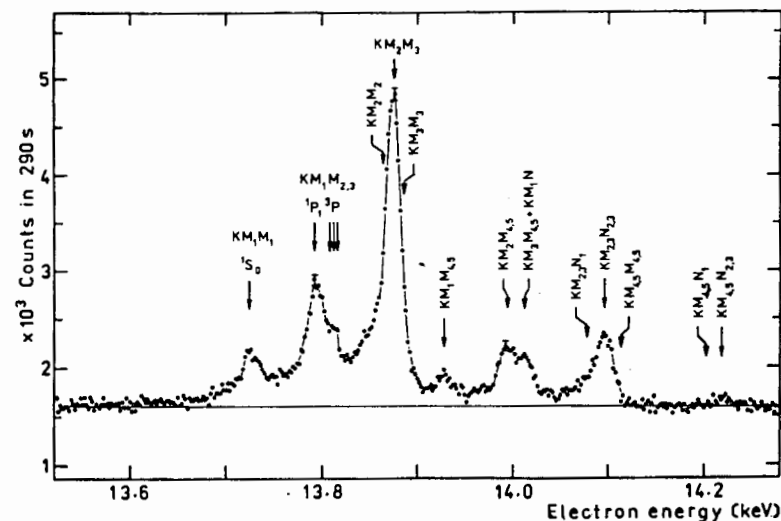


Рис. 7. Спектр $KMM+KMX$ -электронов Оже ^{83}Kr [7], измеренный при приборном разрешении 12 эВ с шагом 2 эВ.

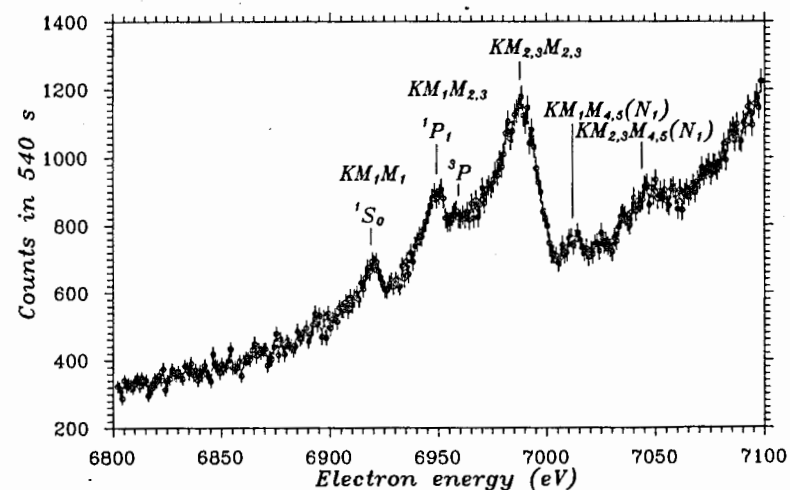


Рис. 8. $KMM+KMN$ -спектр оже-электронов ^{57}Fe [15], измеренный при приборном разрешении 7 эВ и с шагом 1 эВ. Спектр находится на низкоэнергетическом "хвосте" очень интенсивной K-линии спектра конверсионных электронов перехода 14.4 кэВ в ^{57}Fe .

эВ по сравнению с измеренными положениями. При этом для

низкоэнергетических линий в одну сторону, а для высокоэнергетических в противоположную. Это явно свидетельствует о допущенной в расчетах энергий $KM_2M_3(^1D_2)$ -перехода *ошибке*.

Относительные интенсивности $KMM+KM_X$ -переходов определены с точностью $2\div 7\%$ для сильных линий и $10\div 15\%$ для слабых. Это позволило провести довольно детальный анализ предсказаний разных расчетов, включая наши. В результате сделан вывод о том, что корректная **теория интенсивностей** KMM -переходов в исследованной области Z должна строиться на **схеме промежуточной связи**, учитывать, по крайней мере, взаимодействие $(3s)^0(3p)^6$ и $(3s)^2(3p)^4$ конфигураций электронов в конечном состоянии атома, а также релятивистские эффекты вплоть до $Z\sim 25$. Все расчеты дают завышенные значения относительной интенсивности для $KM_1M_2(^1P_1)$ -перехода.

Согласно теории промежуточной связи полный спектр **L-оже** электронов в области $Z\sim 60$ состоит из более чем 600 переходов с энергиями от ~ 3 до ~ 8 кэВ, группирующихся в плотные мультиплеты (см. рис. 9). Многие из них неразрешимы в принципе. В результате **детальное** экспериментальное исследование L-оже спектров с применением **твердотельных** радиоактивных источников **чрезвычайно сложным**. До нас лишь в нескольких случаях делались попытки провести такие исследования. Имеющиеся экспериментальные данные позволили сделать лишь выводы об **основных** характеристиках L-оже спектров.

Нами **детально** исследованы полные спектры L-оже электронов или их частей для **10** элементов в области $26\leq Z\leq 70$: $^{57}_{26}\text{Fe}$ [18], $^{83}_{36}\text{Kr}$ [6], $^{131}_{54}\text{Xe}$ [25], $^{145}_{61}\text{Pm}$ [26], $^{155}_{64}\text{Gd}$ [32,33], $^{159}_{65}\text{Tb}$ [32], $^{165}_{67}\text{Ho}$ [32], $^{167}_{68}\text{Er}$ [32,34], $^{169}_{69}\text{Tm}$ [32,35] и $^{171}_{70}\text{Yb}$ [32]. Для $^{111}_{48}\text{Cd}$, $^{146}_{62}\text{Sm}$, $^{159}_{66}\text{Dy}$ и $^{221}_{87}\text{Fr}$ измерена только доминирующая группа $L_3M_{4,5}M_{4,5}$ -линий. В качестве примера на рис. 9 и 10 приведен полный спектр $^{165}_{67}\text{Ho}$ и группа $L_3M_{4,5}M_{4,5}$ -оже электронов $^{169}_{69}\text{Tm}$, соответственно.

В спектрах разрешено от **52** ($^{159}_{65}\text{Tb}$) до **89** ($^{131}_{54}\text{Xe}$) линий или групп линий и определены с высокой точностью их **энергии** и относительные **интенсивности**.

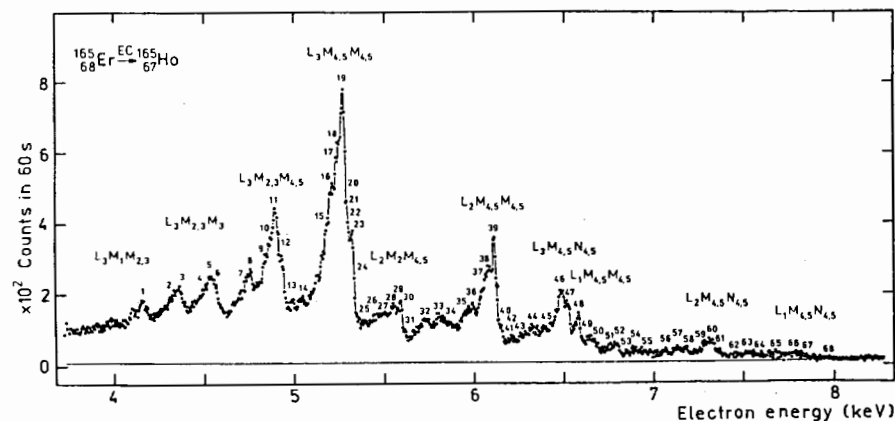


Рис. 9. Спектр L-оже электронов ^{165}Ho ($Z=67$) [32], измеренный с шагом 5 эВ при приборном разрешении 12 эВ. Номерами обозначены компоненты, полученные в обработке.

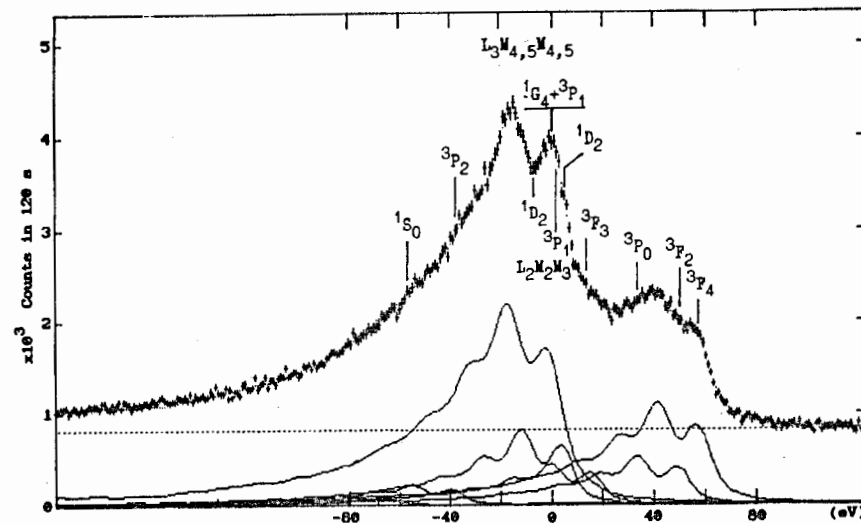


Рис. 10. Доминирующая группа $L_3M_{4,5}M_{4,5}$ -линий спектра L-оже электронов ^{169}Tm [35], измерена при приборном разрешении 6.5 эВ с шагом 1 эВ. Сплошные линии – компоненты промежуточной связи, полученные в обработке. Их положения показаны вертикальными линиями. Наблюдаются интенсивные низкоэнергетические спутники “наблюдаемых вакансий”.

Известное из литературы максимальное число выделенных в L-оже спектре

линий в области $54 \leq Z \leq 70$ не превышает 20. Все измеренные спектры в той или иной степени усложнены присутствием низкоэнергетических *спутников* "наблюдаемых вакансий" сложной структуры. В случае группы $L_3M_{4,5}M_{4,5}$ -линий $^{169}_{69}\text{Tm}$ спутник в 1.7 раз *интенсивнее* основного пика (см. рис. 10).

Впервые в области средних и средне тяжелых элементов наблюдается *структура* некоторых линий, предсказанная теорией *промежуточной связи*. В особенности это имело место в случае наиболее интенсивных мультиплетов $L_3M_{4,5}M_{4,5}$ и $L_3M_{2,3}M_{4,5}$, а также дублетов $L_3M_1M_3$, $L_3M_2M_3$ и $L_3M_3M_3$.

Преобладающая *точность* в определении *относительных* энергий хорошо разрешенных линий составляла $1 \div 4$ эВ. Из сравнения наших данных с результатами *полуэмпирических* расчетов Ларкинса и "ab initio" расчетов Чена (1985) вытекает, что полуэмпирические расчеты несколько *точнее* предсказывают *относительные* положения линий в спектрах. Но "ab initio" расчеты передают более *точно расщепления* некоторых линий, в особенности дублетов $L_3M_1M_3$, $L_3M_2M_3$ и $L_3M_3M_3$. Сравнение также показывает, что учет некоторых корреляционных эффектов, влияние которых Ченом только демонстрируется на примере нескольких переходов, может *улучшить согласие* относительных "ab initio"-энергий с экспериментом.

Абсолютные энергии доминирующей $L_3M_4M_5(^1G_4)$ -линии определены с погрешностью $1.3 \div 2.6$ эВ в лучших случаях, в остальных не хуже 6 эВ (см. табл. 3). *Полуэмпирические* значения *систематически* на ~ 20 эВ ($4 \div 17 \sigma$) *ниже* экспериментальных данных для элементов, возникающих в *электронном захвате*. $L_3M_4M_5(^1G_4)$ -линия $^{131}_{54}\text{Xe}$ и $^{155}_{64}\text{Gd}$ измерялась, как в *электронном захвате*, так и в β^- -распаде (с последующей внутренней конверсией). Значения энергии из электронного захвата *выше* на (9.4 ± 1.1) и (16.8 ± 2.2) эВ, соответственно. При этом измеренная энергия из β^- -распада в случае $^{155}_{64}\text{Gd}$ *согласуется* с расчетным значением в пределах 2 эВ (1σ). Сравнению для $^{131}_{54}\text{Xe}$ препятствует вклад *твердотельных эффектов*. *Согласие* эксперимента с расчетами в пределах 3 эВ (1σ) наблюдается и в случае $^{221}_{87}\text{Fr}$, возникающего в α -

Таблица 3. Сравнение измеренных в этой работе *абсолютных энергий* (в эВ) $L_3M_4M_5(^1G_4)$ -перехода Оже в изучаемых изотопах со значениями полуэмпирических расчетов Ларкинса (1977) и "ab initio" расчетов Чена (1985) (если последние для данного Z были выполнены).

Изотоп	Эксперимент (эта работа)	Теория (полуэмп.)	Теория ("ab initio")	Эксп. – Теор. (полуэмп.)	
				(эВ)	(σ)
$^{57}_{26}\text{Fe}$	703.0 ± 1.7	692.7	---	$+ 10.3 \pm 1.7$	6.1
$^{83}_{36}\text{Kr}$	1473.6 ± 2.6	1460.3	1463.7	$+ 13.3 \pm 2.6$	5.1
$^{111}_{48}\text{Cd}$	2689.2 ± 1.5	2680.8	---	$+ 8.4 \pm 1.5$	5.6
$^{131}_{54}\text{Xe}$	3381.9 ± 1.5 (Э.З.)	3359.9	3365.6	$+ 22.0 \pm 1.5$	15
	3372.5 ± 1.8 (β^-)			$+ 12.6 \pm 1.8$	7.0
$^{145}_{61}\text{Pm}$	4342.6 ± 1.6	4322.4	---	$+ 20.2 \pm 1.6$	13
$^{146}_{63}\text{Eu}$	4488.7 ± 1.9	4470.4	---	$+ 18.3 \pm 1.9$	9.6
$^{155}_{64}\text{Gd}$	4797.0 ± 1.7 (Э.З.)	4778.6	---	$+ 18.4 \pm 1.7$	11
	4780.4 ± 1.8 (β^-)			$+ 1.8 \pm 1.8$	1.0
$^{159}_{65}\text{Tb}$	4956 ± 4	4935.2		$+ 20.8 \pm 4$	5.2
$^{159}_{66}\text{Dy}$	5120.2 ± 2.1	5099.2	---	$+ 21.0 \pm 2.1$	10
$^{165}_{67}\text{Ho}$	5283.7 ± 2.5	5263.6	5263.6	$+ 20.1 \pm 2.5$	8.0
$^{167}_{68}\text{Er}$	5450.3 ± 2.3	5429.7	---	$+ 20.6 \pm 2.3$	9.0
$^{169}_{69}\text{Tm}$	5621.6 ± 1.3	5599.0	---	$+ 22.6 \pm 1.3$	17
$^{171}_{70}\text{Yb}$	5792.3 ± 2.8	5771.3	5776.0	$+ 21.0 \pm 2.8$	7.5
$^{221}_{87}\text{Fr}$	8803 ± 3 (α -распад)	8805.7	---	$+ 2.7 \pm 3$	0.9

* Расчеты для свободных атомов.

распаде $^{225}_{89}\text{Ac}$. Обнаружена *впервые* нами *зависимость* абсолютной энергии $L_3M_4M_5(^1G_4)$ -перехода от *способа* образования первичной вакансии явно вызвана *эффектом атомной структуры*. Таким образом, *впервые* показано, что упрощающее расчеты предположение о возможности отделения процесса оже-перехода от процесса образования первичной вакансии в случае *электронного захвата не оправдано* и для L-оже переходов.

На примере *отношения интенсивностей* линий $L_3M_3M_4/L_3M_3M_5$, $L_3M_5M_5/L_3M_4M_5$, а также компонентов дублета $L_3M_1M_3$, которые разрешены *впервые* нами, продемонстрировано *существенное влияние промежуточной связи* на *интенсивности* L-оже переходов вплоть до $Z=70$.

Наблюдается удивительно хорошее согласие (в пределах 3% для сильных линий) наших данных с относительными *интенсивностями* Чена (1985), вычисленными в схеме промежуточной связи и с учетом релятивистских, а также ряда других эффектов. При этом не только для отдельных линий, или групп линий наиболее “простого” L_3MM -спектра, но и для *распределения* интенсивностей между *компонентами*, образующимися в *схеме промежуточной связи*.

Согласно расчетам Чена (1985), слабые переходы $L_1M_3M_3(^3P_2)$ и $L_1M_1M_{4,5}(^1D_2, ^3D_2)$ *сильно увеличивают* свою интенсивность в области $Z \sim 63$ за счет более сильных переходов $L_1M_1M_{4,5}(^1D_2, ^3D_2)$ и $L_3M_3M_3(^3P_2)$, соответственно, в результате *взаимодействия уровней* $M_3M_3(J=2)$, $M_1M_4(J=2)$ и $M_1M_5(J=2)$. Так интенсивность перехода $L_1M_3M_3(^3P_2)$ должна увеличиться в области максимума влияния эффекта даже в *50 раз*. Проверить расчеты *не удавалось* из-за сложности спектров.

Нами проведена проверка в случае упомянутых выше L_3MM -переходов для $Z=54, 64$ и 69 , а в случае L_1MM -переходов только для $Z=54$. Полученные результаты свидетельствуют о *более сильном*, чем ожидается из теории, влиянии эффекта пересечения уровней, как на L_3MM -, так и на L_1MM -переходы.

Благодаря накопленным нами данным о структуре спектров L-оже электронов редкоземельных элементов *проведены успешные поиски четырех низкоэнергетических ядерных переходов* с помощью спектроскопии конверсионных электронов и определены их энергии и мультипольности, а именно: 7.1 кэВ $E1$ в ^{160}Ho [36,37], 7.6 кэВ $E1$ в ^{158}Ho [38,39], 5.5 кэВ $M1$ и 9.5 кэВ $M1$ в ^{204}Bi [40]. На примере измеренного спектра низкоэнергетических электронов из распада ^{160}Er (см. рис. 11) демонстрируется сложность поиска конверсионных линий. Отсутствие экспериментальных данных о существовании первых двух переходов было одной из причин выдвижения гипотезы об аномально быстрых запрещенных β -переходах, которая продержалась в течение нескольких десятков лет.

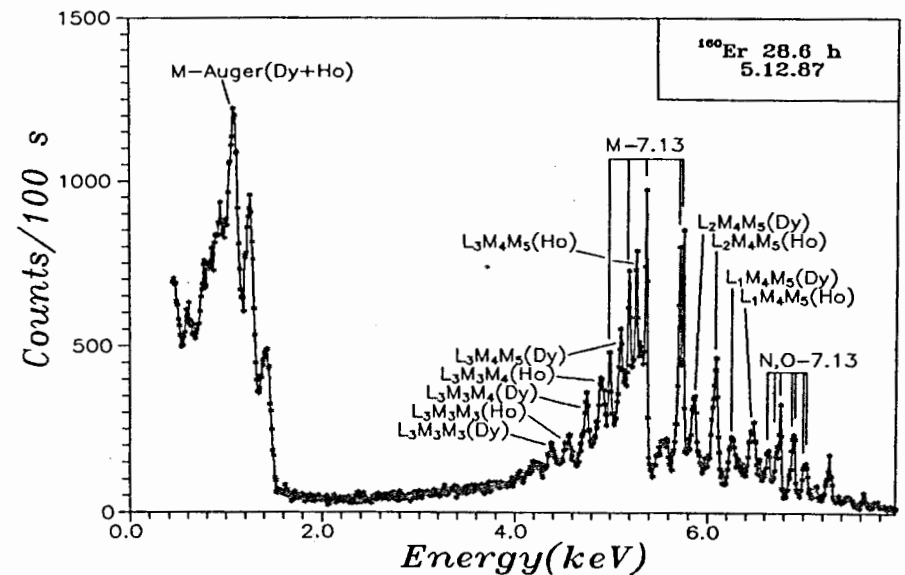


Рис. 11. Спектр низкоэнергетических электронов из распада ^{160}Er [37], измеренный нами при приборном разрешении 9 эВ.

В заключении дана сводка основных результатов, полученных в диссертации.

1. Существенно *развита* прецизионная спектроскопия низкоэнергетических электронов с применением твердотельных радиоактивных бета-источников:
 - разработан, построен и испытан макет спектрометра электронов *нового поколения*, электростатический *спектрограф*, на базе пятикаскадного цилиндрического зеркального анализатора со спрямлением линии фокусов первого порядка;
 - существенно *усовершенствована* методика приготовления тонких бета-источников путем *испарения в вакууме* и разработан *новый*, высокоэффективный метод приготовления бета-источников, основанный на мономолекулярных слоях Лэнгмюра-Блоджетт;
 - *развит* метод обработки дискретных аппаратурных спектров с применением *экспериментальной формы* одиночной линии спектра;

В результате созданы условия для исследования спектров электронов с энергиями в области единиц кэВ не имеющих аналога в мире.

- Предложен и реализован *новый неdestructивный метод* определения валентного состояния *следовых* количеств ^{99m}Tc в *твердотельных* образцах с помощью измерения химических сдвигов энергий конверсионных электронов перехода 2.17 кэВ в ^{99m}Tc . Установлено влияние твердотельных эффектов и эффектов физико-химического окружения радиоактивных атомов на энергии и интенсивности конверсионных и оже-линий в случае $^{83m}\text{Kг}$ и ^{57}Fe .
- Получен большой набор *новых* точных экспериментальных данных об энергиях и относительных интенсивностях KLL-, KLM+KLX-, KMM+KMX-, и LMM+LMX-переходов Оже в области атомных номеров $23 \leq Z \leq 69$ (15 элементов), $23 \leq Z \leq 54$ (9 элементов), $25 \leq Z \leq 36$ (3 элемента) и $26 \leq Z \leq 70$ (10 элементов), соответственно, которые позволили проверить теоретические модели и наметить возможные пути их усовершенствования.
- Впервые экспериментально *подтверждено* сильное влияние релятивистских эффектов на интенсивность $\text{KL}_1\text{L}_2(^3\text{P}_0)$ -перехода Оже в области $32 \leq Z \leq 69$. В результате устранено наблюдавшееся в течение почти 20 лет несогласие релятивистской теории с экспериментом.
- Установлена *зависимость* абсолютных энергий KLL- и LMM-электронов Оже от *способа* образования первичной вакансии. Это указывает на неоправданность одного из основных предположений, упрощающих расчеты энергий оже-переходов - независимости оже-перехода от предыстории образования первичной вакансии.
- Впервые экспериментально доказано влияние эффектов *промежуточной связи* на спектры KLM- и LMM-электронов Оже в области $23 \leq Z \leq 54$ и $54 \leq Z \leq 70$, соответственно.
- Впервые для трех элементов в области $Z \sim 60$ подтверждено теоретическое предсказание об *увеличении* интенсивностей слабых переходов $\text{L}_1\text{M}_3\text{M}_3(^3\text{P}_2)$ и

$\text{L}_3\text{M}_1\text{M}_{4,5}(^1\text{D}_2, ^3\text{D}_2)$ за счет сильных $\text{L}_1\text{M}_1\text{M}_{4,5}(^1\text{D}_2, ^3\text{D}_2)$ и $\text{L}_3\text{M}_3\text{M}_3(^3\text{P}_2)$, соответственно, в результате *взаимодействия* $\text{M}_3\text{M}_3(J=2)$ -, $\text{M}_1\text{M}_4(J=2)$ -, и $\text{M}_1\text{M}_5(J=2)$ -уровней.

- Впервые установлена *зависимость* энергии $\text{KL}_2\text{L}_3(^1\text{D}_2)$ -перехода Оже в ^{57}Fe от *химического* состава радиоактивного источника и связь эффекта с количественным содержанием ^{57}Fe в степени окисления 2^+ в источнике. В результате открывается возможность применения электронной спектроскопии высокого разрешения для определения валентного состояния следовых количеств ^{57}Fe в твердотельных образцах.
- Подтверждено существование введенных на основании баланса схемы распада четырех *низкоэнергетических ядерных переходов* в ^{158}Ho , ^{160}Ho и ^{204}Bi и определены их энергии и мультипольности.

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

- V. Brabec, O. Dragoun, O. Dragounová, J. Novák, M. Fišer, A. Kovalík, M. Ryšavý, Acta Physica Hungarica, **65**(1989)183.
- A. Kovalík, M. Ryšavý, V.M. Gorozhankin, A.F. Novgorodov, Measurement Techniques, **40**(1997)583.
- П.А. Петев, В.М. Горожанкин, Ц.Д. Вылов, А. Ковалик, Е.А. Якушев, Тезисы докладов Международной конференции – 49 совещание по ядерно-спектроскопии и структуре атомного ядра, Дубна, 1999 г., с. 172.
- V.V. Zashkvara, V.E. Masyagin, B.U. Ashimbaeva, A. Kovalík, Ts. Vylov, V. Brabec, O. Dragoun, M. Ryšavý, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., **71**(1995)87.
- Б. Вонс, А.Ф. Новгородов, А. Ковалик, К.А. Беликов, Н.А. Лебедев, Я. Миккульски, Сообщение ОИЯИ, Р6-92-397, Дубна, 1992.
- B. Was, A. Kovalík, A.F. Novgorodov, J. Rak, Nucl. Instrum. Methods in Physics Research A, **332**(1993)334

7. A. Kovalík, V.M. Gorozhankin, A.F. Novgorodov, A. Minkova, M.A. Mahmoud, M. Ryšavý, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **58**(1992)49.
8. O. Dragoun, M. Fišer, V. Brabec, A. Kovalík, A. Kuklík, P. Mikušík, *Phys. Letters A*, **99**(1983)187.
9. M. Fišer, V. Brabec, O. Dragoun, A. Kovalík, J. Frána, M. Ryšavý, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **36**(1985)219.
10. M. Fišer, V. Brabec, O. Dragoun, A. Lázničková, A. Kovalík, M. Ryšavý, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **37**(1986)1213
11. M. Fišer, V. Brabec, O. Dragoun, A. Kovalík, M. Ryšavý, O. Dragounová, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **39**(1988)943.
12. M. Fišer, O. Dragoun, V. Brabec, A. Kovalík, M. Ryšavý в книге "Technecium in Chemistry and Nuclear Medicine 2", редакторы: M. Nicolini, G. Bandoli и U. Mazzi, Cortina International – Verona, Raven Press, New York, 1986.
13. В.М. Горожанкин, А. Ковалик, М.А. Махмуд, Тезисы докладов Международной конференции – 43 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Санкт-Петербург, 1993 г., с. 181.
14. A. Kovalík, V.M. Gorozhankin, *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.*, **19**(1993)1921.
15. A. Kovalík, V.M. Gorozhankin, Ts. Vylov, D.V. Filosofov, N. Coursol, E.A. Yakushev, Ch. Briançon, A. Minkova, M. Ryšavý, O. Dragoun, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **95**(1998)1.
16. A. Kovalík, M. Ryšavý, V. Brabec, O. Dragoun, *Physica Scripta*, **37**(1988)871.
17. A. Kovalík, V. Brabec, J. Novák, O. Dragoun, V.M. Gorozhankin, A.F. Novgorodov, Ts. Vylov, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **50**(1990)89.
18. A. Kovalík, A. Inoyatov, A.F. Novgorodov, V. Brabec, M. Ryšavý, Ts. Vylov, O. Dragoun, A. Minkova, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, **20**(1987)3997.
19. A. Kovalík, E.A. Yakushev, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, I. Štekl, P. Petev, M.A. Mahmoud, Тезисы докладов Международной конференции – 50 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Санкт-Петербург, 2000 г., с. 172.
20. A. Kovalík, M. Ryšavý, V. Brabec, O. Dragoun, A. Inoyatov, A.F. Novgorodov, Ts. Vylov, A. Minkova, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **43**(1987)225.

21. A. Kovalík, V.M. Gorozhankin, A.F. Novgorodov, M.A. Mahmoud, A. Minkova, G.J. Beyer, H. Ravn, *Li Yong II, Сообщение ОИЯИ Е6-90-477, Дубна, 1990.*
22. A. Kovalík, A.F. Novgorodov, E.A. Yakushev, V.M. Gorozhankin, P. Petev, M.A. Mahmoud, Тезисы докладов Международной конференции – 50 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Санкт-Петербург, 2000 г., с. 176.
23. A. Kovalík, E.A. Yakushev, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, P. Petev, M.A. Mahmoud, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **105**(1999)219.
24. A. Kovalík, Y. Isozumi, Ch. Briançon, R.J. Walen, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **83**(1997)259.
25. A. Kovalík, V.M. Gorozhankin, A.F. Novgorodov, M.A. Mahmoud, N. Coursol, E.A. Yakushev, V.V. Tsupko-Sitnikov, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **95**(1998)231.
26. A. Kovalík, E.A. Yakushev, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, P. Petev, I. Štekl, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **107**(2000)239.
27. A. Kovalík, A.F. Novgorodov, V.M. Gorozhankin, E.A. Yakushev, M.A. Mahmoud, P. Petev, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **87**(1997)1.
28. A. Kovalík, A. Minkova, Ts. Vylov, R.J. Walen, Ch. Briançon, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **83**(1997)181.
29. А. Ковалик, Е.А. Якушев, С.И. Рейман, А.Ф. Новгородов, Д.В. Философов, В.М. Горожанкин, Д. Варга, Л. Кэвэр, О. Драгоун, Ц. Вылов, Тезисы докладов Международной конференции – 51 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Саров, 2001 г.
30. А. Ковалик, А. Инояттов, А.Ф. Новгородов, В. Брабец, М. Рышавы, Ц. Вылов, О. Драгоун, А. Минкова, Препринт ОИЯИ Р6-86-133, Дубна, 1986.
31. A. Kovalík, E.A. Yakushev, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, I. Štekl, P. Petev, M.A. Mahmoud, Тезисы докладов Международной конференции – 50 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Санкт-Петербург, 2000 г., с. 173.
32. A. Kovalík, V.M. Gorozhankin, A.F. Novgorodov, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **60**(1992)71.
33. A. Kovalík, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **70**(1994)51.

34. A. Kovalik, E.A. Yakushev, A.F. Novgorodov, V.M. Gorozhankin, P. Petev, Тезисы докладов Международной конференции – 50 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Санкт-Петербург, 2000 г., с. 179.
35. A. Kovalik, M.A. Mahmoud, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., **61**(1993)323.
36. В.М. Горожанкин, В. Брабек, С.К. Васильев, Ц. Вылов, К.Я. Громов, О. Драгоун, В.Г. Калинин, А. Ковалик, Н.А. Лебедев, А.Ф. Новгородов, Препринт ОИЯИ Р6-87-931, Дубна, 1987.
37. V.M. Gorozhankin, A. Kovalik, V.G. Kalinnikov, Ts. Vylov, K.Ya. Gromov, N.A. Lebedev, A.F. Novgorodov, O. Dragoun, V. Brabec, S.K. Vasilev, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys., **16**(1990)99.
38. В.М. Горожанкин, В.Г. Калинин, А. Ковалик, Н.Ю. Котовский, Н.А. Лебедев, М.А. Махмуд, А.Ф. Новгородов, М. Рышавы, А.А. Солнышкин, Е.А. Якушев, Тезисы докладов Международной конференции – 45 совещание по ядерно спектроскопии и структуре атомного ядра, Санкт-Петербург, 1995 г., с. 88.
39. V.M. Gorozhankin, V.G. Kalinnikov, A. Kovalik, A.A. Solnyshkin, A.F. Novgorodov, N.A. Lebedev, N.Yu. Kotovskij, E.A. Yakushev, M.A. Mahmoud, M. Ryšavý, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys., **22**(1996)377.
40. V. Brabec, A. Kovalik, O. Dragoun, M.Ya. Kuznetsova, A. Maštalka, J. Adam, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys., **16**(1990)1221.

Получено 19 февраля 2002 г.