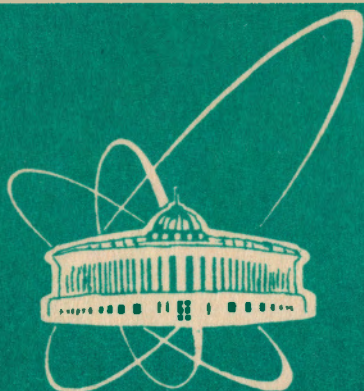


93-247



СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P14-93-247

В.А.Алтынов

О ФОРМЕ РЕНТГЕНОВСКИХ СПЕКТРОВ,
ВОЗБУЖДЕННЫХ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

1993

В спектрах характеристического рентгеновского излучения металлов четвертого периода, возбужденных ионами ксенона с энергией 125 МэВ (см. работу [1]), были отмечены следующие закономерности : во-первых, зарегистрированная ширина пиков значительно возрастает по мере увеличения атомного номера мишени, причем это возрастание не может быть объяснено только изменением разрешающей способности спектрометра ; во-вторых, даже при сравнительно большом отношении скорости иона к скорости орбитального электрона (в упомянутой работе это отношение ≈ 0.3) существенный вклад в образование вакансий на внутреннем уровне излучающего атома помимо кулоновского возбуждения вносит пересечение уровней сталкивающихся частиц. Было обнаружено также несовпадение экспериментальных и рассчитанных методом Хартри-Фока положений центров тяжести сателлитов кратной ионизации.

Для выяснения возможных причин указанных особенностей в настоящей работе будет рассмотрено в рамках некоторых модельных представлений влияние отдельных факторов на форму рентгеновских спектров, возбужденных ускоренными тяжелыми ионами. Основными параметрами, характеризующими спектральные линии (обсуждаемые спектры имеют линейчатый характер) являются энергетическое положение максимума интенсивности, величина максимума, а также ширина линии, измеренная на половине максимума. При регистрации мультиплета, расстояние между компонентами которого меньше разрешающей способности спектрометра, максимум интенсивности соответствует центру тяжести мультиплета, а контур линии может иметь несимметричную форму (это определяется относительной интенсивностью компонентов мультиплета и расстоянием между ними). На положение максимума оказывает влияние также наличие внеш-

них полей, в которых может оказаться излучающий атом (эффекты химической связи, влияние поля налетающего иона). Дополнительным фактором, влияющим как на положение максимума, так и на форму линии, является наличие у атома скорости в момент излучения фотона (эффект Доплера). Поскольку при ионной бомбардировке имеют место все отмеченные процессы, то учет их влияния необходим для правильной интерпретации экспериментальных результатов.

1. Доплеровские искажения при ионной бомбардировке

Проведенные ранее оценки сдвига и уширения линий рентгеновского спектра при возбуждении излучения ускоренными тяжелыми ионами не дают полного представления о форме искажений, вносимых в спектр из-за наличия у излучающих атомов скорости отдачи. В работе [2] принимались во внимание только те траектории налетающего иона, при которых атому мишени передается максимальная скорость. Поскольку это происходит при лобовых столкновениях, число которых, строго говоря, равно нулю, полученные в названной работе оценки определяют лишь интервал возможных значений доплеровского сдвига, но не отвечают на вопрос о вероятности различных значений из этого интервала, т.е. о форме доплеровского профиля (ДП). В работе [3] при определении ДП рассматривались только траектории с прицельным параметром b , приблизительно равным радиусу К-оболочки атома мишени, что приводит к неправильной оценке вероятности больших доплеровских сдвигов. Ниже будет проведен расчет вероятности доплеровского смещения во всем интервале его возможных значений.

Как известно, связь между энергией кванта ε_0 , испущенного атомом, движущимся со скоростью v и зарегистрированным неподвижным детектором как квант с энергией ε , дается формулой

$$\beta = \frac{v}{c} = \frac{(1 - v^2/c^2)^{1/2}}{(1 - v/c \cos \theta)}, \quad (1)$$

где c - скорость света,

θ - угол между направлением движения атома и детектором.

При определении зависимости v и θ от параметров столкновения были приняты следующие допущения :

1) процесс столкновения описывается формулами классической механики [см. 4], т.е. скорость атома отдачи в л-системе

$$v = \frac{2m_1}{(m_1 + m_2)} v_{\infty} \cos \theta = 2A C \cos \theta,$$

а связь прицельного параметра b с углом рассеяния θ выражается формулой

$$b = Z_1 Z_2 e^2 / M v_{\infty}^2 \operatorname{tg} \theta.$$

В приведенных формулах использованы следующие обозначения:

v_{∞} - скорость иона на бесконечности,

m_1 и m_2 - масса иона и атома мишени соответственно,

M - приведенная масса,

Z_1 и Z_2 - заряд ядра иона и атома мишени соответственно.

$e = 1.44 \cdot 10^{-13}$ МэВ см;

2) Ионизация происходит только в таких столкновениях, для которых прицельный параметр b меньше радиуса К-оболочки атома мишени [5].

Для проведения расчетов введем следующую систему координат (см. рис. 1): направление пучка ионов примем за ось Z , направление на детектор - за ось X (в работе [1], как и в большинстве других экспериментальных работ, детектор расположен под углом 90° к направлению пучка), ось Y выберем так, чтобы иметь правую систему координат; символом R обозначено направление скорости атома отдачи.

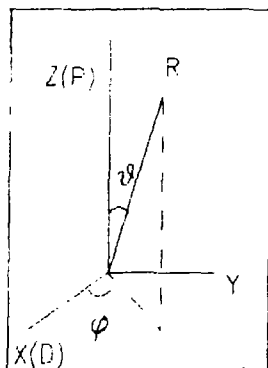


Рис. 1

При таком выборе осей угол рассеяния θ совпадает с полярным расстоянием сферической системы координат, а связь угла регистрации излучения θ с углами θ и φ дается формулой

$$\cos \theta = \sin \theta \cos \varphi.$$

Представляется более удобным провести вычисления для относительного сдвига δ :

$$\delta = \beta/\beta_0 - 1 = (1 - 4 A^2 \cos^2 \theta)^{1/2} / (1 - A \sin 2\theta \cos \varphi) - 1.$$

Предельные значения $\delta \approx \pm A$ достигаются при $\theta \approx \pm \pi/4$ и $\varphi = 0$, $\varphi = \pi$. Для системы Хе (125 МэВ) - Т1 параметр $A = 0.033$, что соответствует 150 эВ, этот результат совпадает с оценками, приведенными в работе [2].

Поскольку δ является непрерывной случайной величиной, она может быть описана функцией $w(\delta)$, представляющей собой вероятность того, что $\delta < \delta$. Производная от этой функции по δ , называемая плотностью вероятности, будет представлять собой искомый доплеровский профиль. Как известно из теории вероятностей, функция w для случайной величины δ , функционально связанной с двумя независимыми непрерывными случайными величинами (θ и φ), определяется следующим образом [6]:

$$w(\delta) = \iint_{\delta(\theta, \varphi) < \delta} d\theta d\varphi f_1(\theta) f_2(\varphi), \quad (2)$$

где $f_1(\theta)$ и $f_2(\varphi)$ - плотности вероятности для величин θ и φ .

Очевидно, что $\rho(\Delta)$ является равномерно распределенной в интервале $(0, 2\pi)$. В качестве $f_1(\theta)$ мы будем использовать, как и было оговорено ранее, формулу Резерфорда. Т.о., окончательное выражение для доплеровского профиля $\rho(\Delta)$ имеет следующий вид:

$$\rho(\Delta) = B \frac{d}{d\Delta} \iint_{\substack{\theta < \theta_{max} \\ \varphi < \varphi_{max}}} d\theta d\varphi \sin^2 \theta \cos^2 \varphi, \quad (3)$$

$$B = (Z_1 Z_2 K / K v^2) / 2\pi.$$

Следует отметить, что согласно второму исходному предположению при определении пределов интегрирования использовано дополнительное условие $\theta < \theta_{max}$ - угла рассеяния, соответствующего прицельному параметру b , равному радиусу К-оболочки атома мишени a_k .

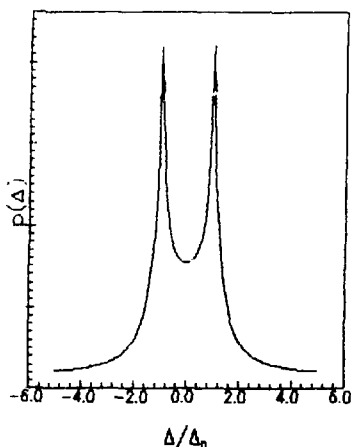


РИС. 2

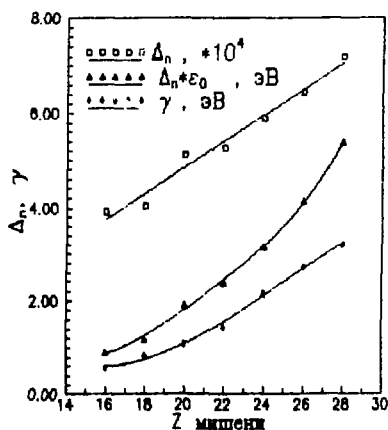


РИС. 3

Наибольший интерес для спектроскопии представляет область небольших относительных сдвигов, соизмеримых с естественной шириной рентгеновской линии. В этой области величина скорости отдачи мала, и, следовательно, можно использовать нерелятивистское выражение для эффекта Доплера. В таком случае зависимость δ от β и α описывается формулой

$$\delta = A \sin 2\beta \cos \alpha.$$

Общий вид полученного в результате расчетов ДП бесконечно узкой линии при данной геометрии регистрации излучения представлен на рис. 2. Он имеет симметричную форму с локальным минимумом при $\alpha=0$, положение максимумов соответствует $\alpha_n = 2Z_1 Z_2 \beta / m_0 c v_0 a_k$. В области $\alpha > \alpha_n$ $p(\alpha) \approx 1/\alpha^3$, при $\alpha < \alpha_n$ ДП описывается более сложной функцией. Число фотонов, регистрируемых в интервале $[-\alpha_n, \alpha_n]$, составляет 50 % общего числа фотонов, испущенных при столкновении, поэтому предложенную в работе [3] аппроксимацию доплеровского профиля в виде прямоугольника с шириной основания, равной $2\alpha_n$, вряд ли можно считать удовлетворительной. Следует отметить также, что при бомбардировке различных мишеней ионами одного сорта с одинаковой энергией расстояние между максимумами увеличивается по мере роста Z_2 , причем абсолютная величина этого расстояния пропорциональна кубу Z_2 (см. рис. 3). На этом же рисунке для сравнения представлена зависимость естественной ширины линии Γ от Z_2 по данным справочника [8]. Из сопоставления кривых $\alpha_n(Z_2)$ и $\Gamma(Z_2)$ видно, что с ростом атомного номера мишени увеличивается относительный вклад доплеровских искажений в полную ширину зарегистрированной линии.

Проведенные автором расчеты "экспериментальной" формы линии с учетом ее естественной ширины, аппаратной функции спектрометра и ДП для мишеней из титана и серы, бомбардируемых ионами ксенона с энергией 125 МэВ, хорошо совпадают с

данными работы [1]. Дополнительным подтверждением правоты сделанных при выводе вида ДП предположений являются результаты работы [7], посвященной экспериментальному изучению рентгеновских и оже-переходов атомов аргона, бомбардируемых ионами урана с энергией 5,9 МэВ/атом. Форма линии, зарегистрированная в этой работе, хорошо передается суперпозицией двух гауссовых кривых с расстоянием между ними ≈ 1 эВ при энергии линии 2170 эВ, т.е. 0,023 % от ее энергии, что также совпадает с представленными результатами.

Таким образом, проведенные расчеты показывают, что в рассмотренной в настоящей работе геометрии эксперимента доплеровские эффекты не вызывают сдвига рентгеновских линий атомов мишени, а приводят к их уширению, причем это уширение тем больше, чем больше атомный номер мишени. Относительная же величина такого уширения будет одинаковой для линий всех кратностей ионизации.

2. Влияние поля налетающего иона на положение линий

В процессе ион-атомного столкновения атом мишени испытывает воздействие поля ядра налетающего иона, которое вызывает изменение энергий уровней атома. Поскольку рентгеновский квант может быть испущен при различных межъядерных расстояниях, то энергия этого кванта изменяется в широких пределах – от энергии перехода в изолированном атоме до энергии перехода в объединенном атоме, с зарядом ядра, равным сумме зарядов ядер сталкивающихся частиц. Следовательно, при столкновении испускается непрерывный спектр, распределение энергии квантов в котором может быть описано дифференциальным сечением излучения $d\sigma(\varepsilon)/d\varepsilon$. Аналогично работе [9] запишем это сечение в следующем виде:

$$d\sigma/d\Omega = \int db 2^{-b} p(b) \exp(-t/\tau_0) dR/dv_r,$$

где

$p(b)$ - вероятность ионизации при данном прицельном параметре,

t - время от момента ионизации до момента излучения фотона,

τ_0, τ_r - полное и радиационное время жизни вакансии,

R - расстояние, при котором величина сдвига равна λ ,

v_r - радиальная скорость,

Время t определяется по формуле

$$t = \int_{r_{min}}^R dr / v_r$$

В этой формуле :

r_{min} - расстояние наибольшего сближения,

$$r_{min} = d/2 + (d^2/4 + b^2)^{1/2},$$

$$d = Z_1 Z_2 e^2 / (m_1 + m_2) E_1,$$

E_1 - энергия иона (в л-системе),

Как следует из работы [10], зависимость энергии кванта К-линии от межъядерного расстояния R можно выразить через величины ψ_k^{n1} (n - главное квантовое число, l - орбитальное, $k=0,2$), определяемые следующим образом:

$$\psi_k^{n1}(R) = \frac{1}{R^{k+1}} \int_0^R r^k P_{n1}^2(r) dr + R^k \int_R^\infty \frac{1}{r^{k+1}} P_{n1}^2(r) dr,$$

$$P_{n1}(r) = A_{n1} r^{l+1} \exp(-\alpha_{n1} r).$$

$P_{n1}(r)$ представляют собой приближенные радиальные волновые функции; параметры A_{n1} и α_{n1} определяются из условия нормировки и величины среднего радиуса оболочки $n1$. Интегриро-

вание в этих формулах может быть выполнено аналитически, и, следовательно, можно получить асимптотические значения для больших и малых R .

Времена жизни вакансии, как полное, так и радиационное, зависят от межъядерного расстояния R . Хотя вид этой зависимости неизвестен, но для оценки возможного сдвига рентгеновской линии под влиянием поля налетающего иона, что является основной задачей работы, этот факт не имеет принципиального значения (конкретное спектральное распределение интенсивности может стать предметом отдельного рассмотрения; но ниже будет показано, что доля больших сдвигов в этом распределении чрезвычайно мала).

Следует подчеркнуть, что расчеты проводились для центра тяжести мультиплета, а не каждого из его компонентов. Очевидно, что сдвиги компонентов будут одного порядка величины со сдвигом центра тяжести, но расчетные формулы для последнего имеют более простой вид. Этот сдвиг равен

$$\delta E = 2Z_1 (\Delta_{\circ}^{1s} - \Delta_{\circ}^{2p}) Ry.$$

Уже при $R \approx 1$ а.е. (а тем более при больших значениях) в первом приближении

$$\Delta_{\circ}^{1s} = \Delta_{\circ}^{2p} = 1/R.$$

С учетом следующих членов в выражениях для Δ получим

$$\delta E = 0.667 Z_1 \alpha_{2p}^3 R^2 \exp(-2\alpha_{2p} R) Ry. \quad (4)$$

Для серы $\alpha_{2p} = 5.813953$, следовательно, имеет место быстрое уменьшение величины δE при увеличении межъядерного расстояния R . Так, например, $\delta E(1) = 0.86$ эВ, $\delta E(2) = 3 \times 10^{-6}$ эВ, $\delta E(10) = 3 \times 10^{-46}$ эВ. Для титана параметр $\alpha_{2p} = 8.928571$, что приводит к еще более быстрому уменьшению δE с ростом R .

Обратим внимание также на то, что при больших R можно пренебречь зависимостью τ от R и v_r от R и считать эти величины постоянными.

Отсчет времени можно проводить с момента наибольшего сближения частиц. Для обоснования этого выбора сделаем такие оценки. При энергии иона 1 МэВ /а.е.м. (т.е. скорости $v_0 = 1.4 \cdot 10^9$ см/с) и лобовом столкновении время пролета от $R=r_k$ до r_{min} (а это максимальное время пребывания внутри К-оболочки) равно $3.9 \cdot 10^{-16}$ с. Время перемещения от r_{min} до $R=10$ а.е. составляет $3.8 \cdot 10^{-17}$ с. Следовательно, с большой степенью точности мы можем отсчитывать время от момента наибольшего сближения.

Рассмотренные выше упрощения позволяют записать дифференциальное сечение в следующем виде:

$$d\sigma/d\Omega = \sigma_1 \exp[-R(\epsilon\epsilon) a_0 / v_0 \tau] / 2^{\epsilon\epsilon} [1/R(\epsilon\epsilon) - \epsilon_{2p}] v_0 \tau, \quad (5)$$

где σ_1 - сечение ионизации К-оболочки (мы предполагаем верхним пределом интегрирования какое-то конечное значение b), a_0 - боровский радиус, R измеряется в атомных единицах. Уравнение (4) нельзя аналитически решить относительно R . Однако при больших R можно положить

$$R = -1/2\epsilon_{2p} \ln(\epsilon\epsilon/Z_1 \epsilon_{2p}),$$

и тогда выражение (5) примет вид

$$d\sigma/d\Omega = \sigma_1 (\epsilon\epsilon/Z_1 \epsilon_{2p})^{a_0/2\epsilon_{2p} v_0 \tau} / 2^{\epsilon\epsilon} v_0 \tau \epsilon\epsilon. \quad (6)$$

Исследуем выражение (6). Значение τ для серы равно $7.25 \cdot 10^{-15}$ с. Отношение $a_0/v_0 \tau \approx 5.2 \cdot 10^{-4}$. Следовательно, для малых $\epsilon\epsilon$, т.е. при больших R , будет справедливо $d\sigma/d\Omega \approx 1/\epsilon\epsilon$ (точнее $\approx \sigma_1 a_0 / 2^{\epsilon\epsilon} v_0 \tau \epsilon\epsilon^{-1}$). Сами же сдвиги будут иметь

порядок величины $10^{-80} - 10^{-100}$ эВ. При $E=0$ сечение равняется бесконечности, но число квантов, испущенных в интервале от 0 до ΔE ,

$$N = \int (d/dE) dE$$

будет величиной конечной. При этом 99.5 % вакансий будут заполнены при испускании фотонов, имеющих сдвиг энергии относительно центра тяжести мультиплета $< 3 \cdot 10^{-46}$ эВ, т.е. даже под воздействием поля налетающего иона практически вся интенсивность линии, имеющей нулевую естественную ширину, будет сосредоточена в очень узком (можно даже сказать бесконечно узком) интервале энергий.

Таким образом, в указанном диапазоне энергий иона и атомных номеров сталкивающихся частиц воздействие поля ядра налетающего иона не вызывает сдвига и уширения спектральных линий.

3. Мультиплетная структура сателлитов кратной ионизации

Возникающие под воздействием ионного удара n вакансий в L -оболочке могут быть распределены под ее подоболочкам различными способами. При этом число вариантов распределения зависит от n . Так, например, для $n=1$ мы имеем три варианта - вакансия может быть образована в любой из L_I -, L_{II} -, L_{III} -подоболочек. Для $n=4$ таких вариантов будет уже девять. Каждой конфигурации вакансий соответствует своя энергия перехода, и, например, при $n=4$ могут быть испущены 14 линий разной энергии. Следовательно, если разрешающая способность спектрометра или же шаг сканирования по спектру будут превышать расстояние между линиями, соответствующими переходам при

одной кратности ионизации, то, из-за различия количества компонентов мультиплета при различных n , ширина пиков в зарегистрированном спектре будет различна. Отметим также, что по мере роста числа вакансий в L-оболочке увеличивается эффективный заряд ядра излучающего атома, и, следовательно, ширина каждого компонента мультиплета будет тем больше, чем больше значение n .

Поскольку в литературе отсутствуют данные об энергиях переходов в многократно ионизированных атомах, то расчет этих энергий для серы, титана, железа и никеля при всех возможных распределениях n вакансий по подоболочкам L-оболочки ($n=0-7$) был проведен в настоящей работе с использованием программы NEX [11], в которой применяется метод Дирака-Фока-Слейтера с замороженными орбиталями. Анализ полученных результатов показал, что с ростом атомного номера излучателя происходит увеличение расстояния между крайними компонентами KL^n - мультиплета, а у элементов IV периода имеет также место частичное наложение компонент соседних сателлитов. Очевидно, что величина такого наложения будет быстро возрастать при облучении все более тяжелых мишеней. У легких элементов структура сателлитов "компактна", и подобное наложение отсутствует.

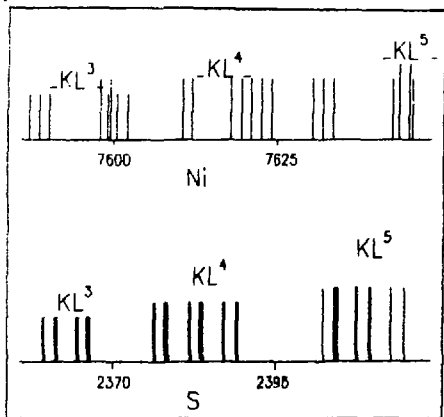


Рис. 4
Энергетическое положение
компонентов KL^3 - KL^5 сателлитов серы и никеля

Этот факт проиллюстрирован рисунком 4, на котором показаны энергетические положения компонентов $KL^3 - KL^5$ мультиплетов серы и никеля (мультиплетная структура KL^3 и KL^5 сателлитов никеля представлена лишь в области, прилегающей к KL^4).

Отмеченное наложение сателлитов обуславливает смещение центра тяжести неразрешенного мультиплета, что может привести к неправильному определению величины сдвигов, вызванных, например, изменением химического окружения излучающего атома (такие сдвиги выявлены в спектрах элементов II и III периодов, см. [12-15]). Для тяжелых элементов определение этих сдвигов становится весьма затруднительным или даже вообще невозможным.

4. Заключение

В таблице 1 представлено влияние каждого из рассмотренных факторов на положение центра тяжести и ширину сателлитного KL^4 -пика никеля. Из приведенных в ней данных следует, что большая ширина пика обусловлена, главным образом, его мультиплетностью. Отмеченное в предыдущем разделе наложение крайних компонентов соседних сателлитов ограничивает возможности практического использования ионного возбуждения для

Таблица 1

	Эффект Доплера	Поле иона	Мультиплетность
положение ц. т.	нет(*)	нет	да
ширина (эВ)	11	0	48 (**)

* - при расположении детектора под углом 90° к пучку

** - расстояние между крайними компонентами мультиплета

изучения влияния химического окружения на рентгеновские спектры. Представляется нецелесообразным применять этот метод для элементов IV и более высоких периодов.

Существенный вклад в полную ширину пика вносит также эффект Доплера. Определение его величины носит оценочный характер, поскольку в разных источниках приводятся различные значения радиусов электронных оболочек атомов. Тем не менее, при обработке экспериментальных данных наряду с учетом аппаратных искажений для восстановления формы спектра могут быть использованы полученные в настоящей работе выражения для доплеровского профиля. Достоверность вычисленных при такой обработке значений энергетического положения и интегральной интенсивности пиков обуславливается тем, что эффект Доплера не вызывает сдвига спектральных линий.

Считаю приятным долгом поблагодарить С.М.Блохина за стимулирующие дискуссии.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Алтынов В.А. и др. - Известия АН СССР, серия физическая, т. 46, с. 745, 1982
2. Блохин С.М., Пономарев С.С. - Журнал структурной химии, т. 18, с. 661, 1977.
3. Mann R. e.a. - J. Phys. B: Atom. Molec. Phys. v 11, p. 3045, 1978.
4. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Механика, М.: Наука, 1973.
5. McGuire J.H., Richard P. - Phys. Rev., v. A8, p. 1374, 1973.
6. Корн Г., Корн Т. Справочник по математике, М.: Наука, 1984.
7. Вeyer H.F. e.a - J. Phys. B: Atom. Molec. Phys. v 15, p. 3853, 1982.
8. Блохин М.А., Швейцер И.Г. Рентгеноспектральный справочник М.: Наука, 1982.

9. Алтынов В.А., Блохин С.М. и др. - в сб.: Труды XI Всесоюзного совещания по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, М.: Из-во МГУ, 1982, с. 545.
10. Artukh A.G. e. a. - J. Phys. B: Atom and Mol. Physics, v. 18, 1985.
11. Liberman D.A. e.a. - Comp. Phys. Commun., v. 2, p. 107, 1971.
12. Burkhalter P.G. e.a. - Phys. Rev., v. A6, p. 2093, 1972.
13. McWherter J. e.a. - Phys. Rev., v. A10, P.200, 1974.
14. Ozava K., Kawatsura K. - Nucl. Instr. and Meth., v. 132, p. 517, 1976.
15. Moore C.F. e.a. -Phys. Lett., v. A54, p. 407, 1975.

Рукопись поступила в издательский отдел
30 июня 1993 года.