

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P6-86-133

А.Ковалик, А.Х.Инояттов, А.Ф.Новгородов,
В.Брабец, М.Рышавы, Ц.Вылов,
О.Драгоун, А.Минкова

ИССЛЕДОВАНИЕ KLL- И KLM-СПЕКТРОВ
ОЖЕ-ЭЛЕКТРОНОВ ЖЕЛЕЗА
ПРИ РАСПАДЕ ^{57}Co — ^{57}Fe

Направлено в Оргкомитет
36 Сопевания по ядерной спектроскопии
и структуре атомного ядра
/Харьков, апрель 1986 г./

1986

1. Введение

Экспериментальное исследование спектров оже-электронов и, в особенности, наиболее интенсивной и простой К-серии, играет существенную роль в создании адекватной теории оже-эффекта.

В настоящее время наиболее полно исследована KLL-группа. Интенсивности KLL-переходов удовлетворительно предсказываются релятивистскими расчетами ^{1,2/} в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций. Все же имеются расхождения с экспериментом, особенно в случае малоинтенсивных переходов. Для усовершенствования упомянутых выше расчетов необходимо уточнить имеющиеся данные и расширить экспериментальное исследование в малоизученной области $20 < Z < 35$.

Более слабая по интенсивности и более сложная по структуре KLM-группа изучена значительно меньше. При этом в области $Z > 40$ релятивистские расчеты ^{3/} в схеме jj-связи, так же, как и нерелятивистские расчеты ^{4/} в систематике промежуточной связи, достаточно хорошо описывают интенсивности переходов. В области же $Z < 40$ влияние промежуточной связи на интенсивности KLM-переходов становится заметным и при переходе от одного типа связи к другому, должно существенно измениться отношение интенсивностей линий $KL_{3M_{2,3}}$ к $KL_{2M_{2,3}}$ (влияние релятивистских эффектов на интенсивности этих линий незначительно, так как они принадлежат к "нерелятивистской" конфигурации дырок $(2p)^I$ $(3p)^I$ в конечном состоянии атома).

Таким образом, тщательное экспериментальное исследование отношения интенсивностей линий $KL_{3M_{2,3}}/KL_{2M_{2,3}}$ в области $Z \leq 30$ необходимо для окончательных выводов о применимости той или иной схемы связи. В настоящее время подобное измерение проведено только для $Z = 35$ ^{5/}.

Более сложным вопросом являются квантовомеханические вычисления энергий KLL- и KLM-переходов оже, и в настоящее время широкое применение нашли различные полуэмпирические расчеты, среди которых лучшими считают ^{6/}. Поскольку в работе ^{6/} использованы лишь экспериментальные значения энергий связи электронов, то точность расчетов определяется, главным образом, точностью этих величин.

Целью настоящей работы является экспериментальное исследование спектров KLL- и KLM-оже-электронов железа ($Z = 26$) при распаде ⁵⁷Co и сравнение полученных результатов с теоретическими предсказаниями. Спектр KLL-электронов оже исследовался ранее ^{7/}, а детальное изучение спектра KLM проводилось впервые.

2. Приготовление источников ⁵⁷Co

Источники ⁵⁷Co изготавливались методом испарения в вакууме.

Препарат ⁵⁷Co ($T_{1/2} = 271$ дн.), полученный из ВО "Изотоп" в виде раствора без носителя, переочищался и концентрировался на хроматографической колонке, заполненной смолой DOWEX 1x8. Фракция ⁵⁷Co объемом не более 4-х капель выпаривалась на фторопластовой подложке почти досуха. К остатку добавлялись 1-2 капли слабого водного раствора аммиака, и из полученного раствора кобальт электролитически осаждался на предварительно прокаленную танталовую лодочку.

Перед испарением ⁵⁷Co на подложку, лодочка с нанесенной на нее активностью постепенно омически нагревалась в вакууме до $\sim 700^\circ\text{C}$ и выдерживалась при этой температуре в течение 2-3 минут. Десорбирующиеся при этом загрязнения осаждались на подвижный танталовый экран.

После предварительного прогрева экран отводился в сторону без нарушения вакуума, и над лодочкой устанавливалась подложка с маской. Испарение ⁵⁷Co производилось в течение нескольких секунд при температуре около 1200°C в вакууме $1 \cdot 10^{-6}$ торр. При испарении подложка вместе с маской вращалась вокруг собственной оси со скоростью около 2000 об/мин.

Было приготовлено несколько источников диаметром 5 мм на Be-, Al- и Ti-подложках полусферической формы. Полированные поверхности подложек перед испарением обрабатывались ионной бомбардировкой в атмосфере аргона. Видимые пятна от источников на поверхности подложек не наблюдались.

Качество изготовленных источников оценивалось по форме измеренной К-линии конверсионных электронов ядерного перехода $I_{4,4}$ кэВ в ⁵⁷Fe (энергия электронов 7,3 кэВ). Наилучшим качеством обладал источник на титановой подложке.

3. Измерения и обработка спектров оже-электронов

Спектры оже-электронов железа измерялись на комбинированном электростатическом спектрометре ^{8/} (ОИЯИ, Дубна) при приборном разрешении ~ 7 эВ в энергетических диапазонах (5,1 + 5,7) кэВ и (5,9 + 6,5) кэВ для KLL- и KLM-групп соответственно. Развертка спектра производилась по замедляющему напряжению с шагом 2 эВ с экспозицией в каждой точке от 90 до 160 с для KLL-группы и от 200 до 500 с для KLM-группы. Приложение отрицательного напряжения 6 В на сферическую сетку, расположенную на входе канального электронного умножителя,

позволило увеличить отношение пик-фон в ~ 2 раза ^{/9/}. Примеры измеренных спектров показаны на рис. 1 и 2.

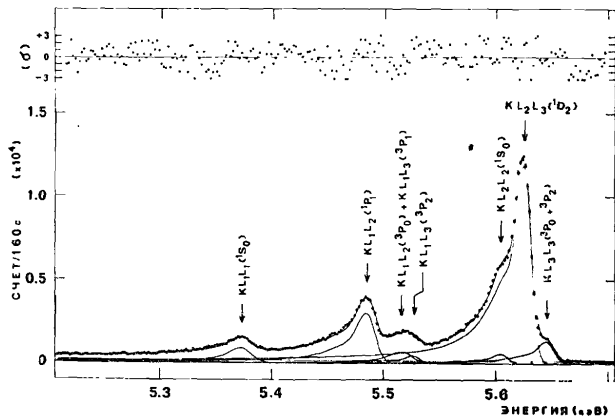


Рис. 1. KLL-спектр оже-электронов железа. В верхней части рисунка приведены нормированные невязки.

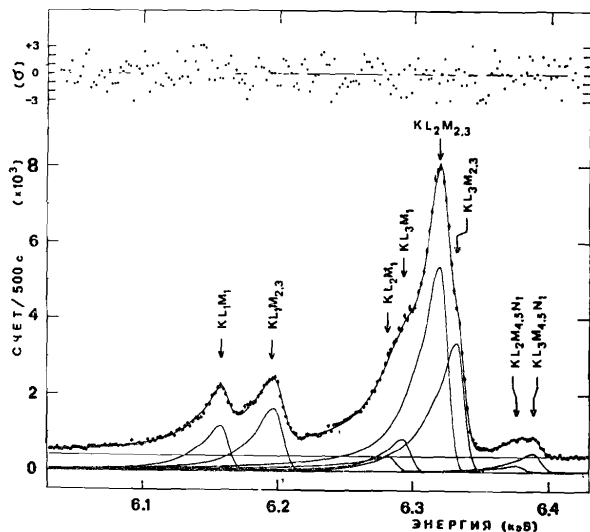


Рис. 2. KLM-спектр оже-электронов железа.

Стабильность работы спектрометра во времени контролировалась измерением линии конверсионных электронов K-I4,4 кэВ в начале и в конце каждой серии измерения. Энергетическое положение линии оставалось неизменным в пределах ± 1 эВ в течение многосуточных измерений с каждым

из источников и в пределах ± 2 эВ в течение нескольких месяцев, когда производилась неоднократная замена источников.

Полученные спектры обрабатывались с помощью программы БРИКА ^{/10/}, в которой форма линии представлялась аналитической функцией, а положение, ширина на полувысоте и амплитуда каждой из линий подгонялись минимизационной процедурой. Фон считался постоянным, а его величину получали также в результате подгонки.

Согласно теории промежуточной связи ^{/11/}, KLL-спектр электронов Оже состоит из 9 линий. В наших измерениях наблюдались в случае железа только 7 линий (рис. 1).

В KLM-спектре теория промежуточной связи предсказывает 36 линий. Некоторые из них настолько близки по энергиям ^{/6/}, что полная структура KLM-спектра до сих пор не наблюдалась. Для обозначения линий в KLM-спектре железа мы пользовались, для простоты, названиями переходов из теории jj-связи (рис. 2).

Для обработки были выбраны 6 спектров KLL-группы и 5 спектров KLM-группы, полученные от четырех различных источников. При обработке KLM-спектров не учитывалась линия $KL_1M_{4,5}N_1$ из-за слабой интенсивности и наложения ее на низкоэнергетические хвосты наиболее интенсивных линий $KL_2M_{2,3}$ и $KL_3M_{2,3}$. Примеры обработки спектров приведены на рис. 1 и 2 (сплошные линии).

4. Анализ результатов

а) Спектр KLL-оже-электронов

Полученные нами значения энергий и относительных интенсивностей KLL-переходов в железе приведены в таблице I. Для сравнения там же приведены и данные ^{/7/}.

За исключением относительной интенсивности $KL_2L_2(1S_0)$ -перехода, наши результаты и результаты ^{/7/} находятся в хорошем согласии. Наблюдаемое расхождение в интенсивности $KL_2L_2(1S_0)$ -линии, по-видимому, обусловлено большой погрешностью определения интенсивности этой линии из-за наложения пика дискретных потерь линии $KL_2L_3(1D_2)$. К сожалению, нам не удалось изготовить источник ⁵⁷Co такого высокого качества, чтобы линию $KL_2L_3(1D_2)$ измерить без пика дискретных потерь.

В табл. I приведены также значения относительных энергий KLL-переходов Оже в железе, полученные из результатов полуэмпирических расчетов ^{/6/}. Там же приведены и значения относительных интенсивностей этих переходов, определенные графической интерполяцией для железа ($Z = 26$) из результатов релятивистских расчетов в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций ^{/11/}.

Таблица I. Относительные интенсивности и энергии KLL-оже-переходов железа ($Z = 26$)

Переходы	Относительные интенсивности, $KL_1L_2/\Sigma KLL \times 100$			Относительные энергии, (эВ)		
	Наши данные эксп.	/7/ эксп.	/I/ а) теор.	Наши данные эксп.	/7/ эксп.	/6/ теор.
$KL_1L_1(1S_0)$	4,9(2)	4,6(5)	6,7	-252,6(10)	-253(9)	-254,8
$KL_1L_2(1P_1)$	16,3(5)	16,6(9)	19,2	-140,5(5)	-143(7)	-141,7
$KL_1L_2(3P_0)+$						
$KL_1L_3(3P_1)$	4,0(25)	6,4(8)	4,1	-108,8(30)	-110(9)	-107,6 ^{б)}
$KL_1L_3(3P_2)$	2,5(20)	6,4(8)	3,2	-98,7(20)	-110(9)	-98,7
$KL_2L_2(1S_0)$	3(1)	6,1(9)	5,1	-23,5(20)	-23(9)	-17,8
$KL_2L_3(1D_2)$	62,2(15)	60,3(24)	54,2	0,0	0	0,0
$KL_3L_3(3P_0+3P_2)$	7,0(3)	6,1(9)	7,5	+20,5(5)	+21(9)	+20,3 ^{в)}

- а) Значения для $Z = 26$ получены графической интерполяцией.
 б) Усредненное значение по интенсивностям переходов - из работы /I/.
 в) Относительная энергия перехода $KL_3L_3(3P_2)$.

Как видно из таблицы, имеется расхождение экспериментальных значений относительных интенсивностей наиболее интенсивных линий KLL - спектра $KL_1L_2(1P_1)$ и $KL_2L_3(1D_2)$ и линии $KL_1L_1(1S_0)$ с теоретическими. Расхождения значительно превышают погрешности эксперимента. При этом погрешностью в интерполяции можно пренебречь, так как имеются теоретические значения для элемента с $Z = 25$. Относительные интенсивности остальных переходов определены из эксперимента с гораздо меньшей точностью (за исключением перехода KL_3L_3) и находятся в разумном согласии с теоретическими.

На рис. 3 приведены экспериментальные и теоретические значения относительных интенсивностей перехода $KL_1L_2(1P_1)$, в зависимости от атомного номера Z . В области $Z < 40$ теоретические предсказания оказываются систематически сдвинутыми. Подобное расхождение между теоретическими и экспериментальными данными по относительным интенсивностям в области $Z < 35$ наблюдается и в случае переходов KL_1L_1 и KL_2L_3 .

Сравнивая результаты наших измерений KLL-спектра оже-электронов железа с релятивистскими расчетами /I/ в схеме промежуточной связи, с учетом взаимодействия конфигураций можно сказать, что для описания интенсивностей KLL-переходов Оже в области $Z < 35$, по-видимому, необходимо учитывать в расчетах еще более тонкие эффекты (например, корреляционные эффекты высших порядков).

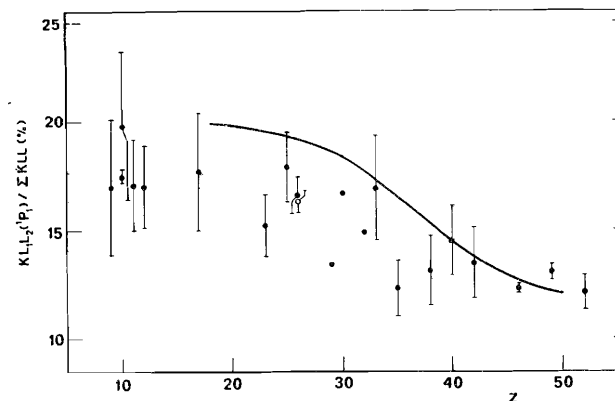


Рис. 3. Зависимость относительной интенсивности $KL_1L_2(1P_1)$ -перехода от атомного номера. Сплошная кривая - результаты релятивистских расчетов /I/; светлый кружок - результат наших измерений.

Относительные энергии KLL-переходов Оже в железе, полученные из наших измерений, довольно хорошо согласуются с приведенными данными полуэмпирических расчетов /6/.

б) Спектр KLM-оже-электронов

Относительные интенсивности и энергии KLM-переходов Оже в железе, полученные из обработки отдельных измерений, согласуются между собой в пределах стандартных отклонений. В таблице 2 приведены усредненные значения результатов измерений и предсказания относительных интенсивностей KLM-переходов Оже для $Z = 25$ двух теоретических подходов: релятивистских расчетов /3/ в схеме jj -связи и нерелятивистских расчетов /4/ в рамках схемы промежуточной связи.

Из табл. 2 видно, что экспериментальные значения относительных интенсивностей KLM-переходов гораздо лучше согласуются с предсказаниями теории промежуточной связи, чем с предсказаниями jj -связи. Особенно это заметно в случае наиболее интенсивных линий $KL_2M_{2,3}$ и $KL_3M_{2,3}$, где расхождения с теорией jj -связи выходят далеко за пределы погрешностей эксперимента.

Выше указывалось на существенную роль отношения интенсивностей переходов $KL_3M_{2,3}$ к $KL_2M_{2,3}$ для проверки применимости данного типа связи к описанию интенсивностей KLM-переходов Оже. На рис. 4 показана зависимость ожидаемого из сравниваемых теоретических расчетов от-

Таблица 2. Относительные интенсивности и энергии КИМ-переходов Оже в железе ($Z = 26$)

Переходы	Относительные интенсивности, $KL_i M_j / KL_1 M_1$			Относительные энергии, (эВ)
	Наши данные, эксп.	/3/ а) теор. а)	/4/ а) теор. а)	
$KL_1 M_1$	1,00	1,00	1,00	-162,2(20)
$KL_1 M_{2,3}$	1,67(8)	1,50	1,62	-123,1(20)
$KL_2 M_1$	0,32(15)	0,48	0,59	-37,4(50)
$KL_3 M_1$	0,75(15)	0,88	0,89	-26,1(40)
$KL_2 M_{2,3}$	4,73(30)	2,18	4,24	0,0
$KL_3 M_{2,3}$	2,90(20)	4,28	3,51	+12,2(10)
$KL_2 M_{4,5} N_1$	0,15(7)	0,10	-	+55,5(50)
$KL_3 M_{4,5} N_1$	0,43(6)	0,26	-	+68,2(10)

а) Данные для $Z = 25$.

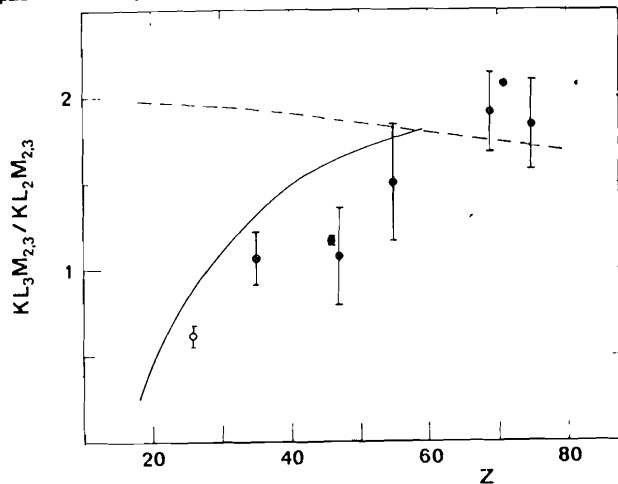


Рис. 4. Зависимость величины отношения интенсивностей переходов $KL_3 M_{2,3} / KL_2 M_{2,3}$ от атомного номера. Сплошная кривая - результаты расчетов /4/ в схеме промежуточной связи; пунктирная - в схеме jj-связи /3/. Результат наших измерений - светлый кружок.

ношения интенсивностей этих переходов от атомного номера (сплошная линия - промежуточная связь /4/, пунктирная линия - jj-связь /3/), а также экспериментальные значения этой величины (результат наших из-

мерений обозначен светлым кружком). Как видно из рис. 4 и табл. 2, значение отношения интенсивностей линий $KL_3 M_{2,3} / KL_2 M_{2,3}$, определенное из наших измерений, согласуется только с предсказанием теории промежуточной связи.

Таким образом, из результатов наших измерений КИМ-спектра оже-электронов железа ($Z = 26$) следует, что адекватная теория для описания интенсивностей КИМ-переходов Оже в атомах с $Z < 35$ должна быть основана на систематике промежуточной связи.

Заметим, что $M_{4,5}$ - и N_1 -электроны атома железа принимают участие в формировании химической связи. Это обстоятельство приводит к зависимости интенсивностей $KL_{2,3} M_{4,5} N_1$ - и $KL_{3,4,5} N_1$ -оже-линий от химического состояния атомов ^{57}Co . Этот факт надо иметь в виду, если пользоваться экспериментальными данными по интенсивностям упомянутых линий.

в) Отношение интенсивностей оже-групп

На основе измерений КИЛ- и КИМ-спектров оже-электронов железа мы также определили отношение интенсивностей отдельных групп: КИМ : КИЛ = $(0,96 \pm 0,22) : (4,03 \pm 0,05)$. Большая относительная погрешность в интенсивности КИМ-группы обусловлена, главным образом, недостаточным знанием изменения абсолютной эффективности спектрометра при больших изменениях энергии измеряемых электронов /8/.

В таблице 3 сравнивается отношение интенсивностей групп КИМ/КИЛ наших измерений с результатом эксперимента /7/ и с результатами расчетов /3/ и /12/. Приведенные теоретические значения получены графической интерполяцией для $Z = 26$.

Таблица 3. Отношения интенсивностей групп КИМ/КИЛ для железа

Эксперимент	Теория а)		
	Работа /7/	/3/	/12/
Настоящая работа	0,19 ± 0,01	0,24	0,23

а) Значения для $Z = 26$ получены графической интерполяцией.

Как видно из табл. 3, экспериментальные значения согласуются в пределах погрешностей эксперимента. Результат наших измерений находится в хорошем согласии с теоретическими значениями.

Заметим, что малоинтенсивная КИМ-группа оже-электронов железа накладывается на КИЛ-группу, и разделить их экспериментально почти невозможно. Таким образом, полученная в нашем эксперименте интенсивность КИМ-группы включает в себя также интенсивность КИЛ-группы.

Литература

1. Chen M.H., Crasemann B. and Mark H. Phys.Rev., 1980, A21, p.442.
2. Asaad W.N. and Petrini D., Proc.Roy.Soc., 1976, A350, p.381.
3. Chen M.H., Crasemann B. and Mark H. At.Data Nucl.Data Tables 1979, 24, p.13.
4. Бабенков М.И. и др. Тезисы докладов XXXVI Совещания по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра. Д."Наука", 1986, с.469.
5. Erman P. et al. Nucl. Phys., 1965, 62, p.401.
6. Larkins F.P. At. Data Nucl. Data Tables, 1977, 20, p.311.
7. Mehlhorn W. and Albridge R.G., Z.Phys., 1963, 175, p.506.
8. Briancon Ch. et al. Nucl.Instrum. Methods, 1984, 221, p.547.
9. Иноятов А.Х. и др. ОИЯИ, Р6-85-753, Дубна, 1985.
10. Rušavý M. and Fišer M. Computer Phys. Commun. 1983, 29, p.171.
11. Asaad W.N. and Burhop E.H.S. Proc.Phys.Soc. 1958, 71, p.369.
12. Bhatta C.P. and Ramsdale D.J. Z.Phys., 1970, 239, p.95.
Bhatta C.P. et al. J.Phys. B.: At Mol. Phys., 1970, 3, p.1232.

Рукопись поступила в издательский отдел
6 марта 1986 года.

Ковалик А. и др.
Исследование KLL- и KLM-спектров оже-электронов железа
при распаде ^{57}Co — ^{57}Fe

Р6-86-133

На комбинированном электростатическом бета-спектрометре изучены KLL- и KLM-спектры оже-электронов железа ($Z = 26$). Определены относительные интенсивности и энергии переходов оже исследуемых спектров и величина отношения интенсивностей групп KLM/KLL. Наблюдается заметное расхождение измеренных относительных интенсивностей наиболее сильных переходов оже в KLL-спектре с результатами релятивистских расчетов в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций. Из сравнения измеренных относительных интенсивностей KLM-переходов (и в особенности отношения интенсивностей линий $KL_3M_{2,3}/KL_2M_{2,3}$) с результатами расчетов в схеме промежуточной и jj-связей сделан вывод о том, что в области $Z < 35$ расчеты относительных интенсивностей KLM-переходов оже должны основываться на схеме связи промежуточного типа. Измеренное нами отношение интенсивностей групп KLM/KLL согласуется с теоретическими предсказаниями.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод О.С.Виноградовой

Kovalik A. et al.
Investigation of KLL- and KLM- Auger Electron Spectra
at the Decay ^{57}Co — ^{57}Fe

Р6-86-133

The KLL and KLM spectra of Fe ($Z = 26$) Auger electrons were studied on a combined electrostatic electron spectrometer. The relative Auger transition intensities as well as energies of the spectra studied have been determined. Intensity ratio of the KLM/KLL groups has been determined as well. A noticeable discrepancy has been found between the measured relative intensities of the strongest KLL Auger transitions and the results of the relativistic calculations in the approximation of intermediate coupling with a configuration interaction. The experimental relative intensities of the KLM Auger transitions were compared with the results of the calculations in the frame of both the intermediate coupling and the jj coupling scheme. It follows from the comparison that the adequate calculations of the KLM transition intensities should be based on the intermediate coupling. The KLM/KLL group intensity ratio obtained is in good agreement with the theoretical predictions.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986