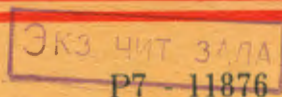


ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



11876



Г.Шорнак, Д.Леманн, Г.Музиоль, Г.Мюллер

САМОСОГЛАСОВАННЫЙ РАСЧЕТ
ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ
ОБОЛОЧЕК АТОМА УРАНА И ЕГО ИОНОВ
ПО МЕТОДУ ДИРАКА-ФОКА-СЛЕТЕРА

1978

P7 - 11876

Г.Щорнак, Д.Леманн, Г.Музиоль, Г.Мюллер

САМОСОГЛАСОВАННЫЙ РАСЧЕТ
ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ
ОБОЛОЧЕК АТОМА УРАНА И ЕГО ИОНОВ
ПО МЕТОДУ ДИРАКА-ФОКА-СЛЕТЕРА

Направлено в журнал "Оптика и спектроскопия"

ОИЯИ
БИБЛИОТЕКА

Шорнак Г. и др.

P7 - 11876

Самосогласованный расчет энергетической структуры оболочек атома урана и его ионов по методу Дирака-Фока-Слетера

По методу Дирака-Фока-Слетера с помощью ЭВМ рассчитано влияние внешних вакансий в атомных оболочках урана на энергетическую структуру оболочек атома и на энергии рентгеновских переходов. Получены значения изменений энергии связи электронов, полной энергии атома и сдвига рентгеновских переходов как функции ионизационного состояния атома. Обнаружены, наряду с возрастанием энергий рентгеновских переходов при последовательном удалении электронов с наименьшей энергией связи, отрицательные сдвиги рентгеновских энергий при удалении электронов из подоболочек 4f-уровней.

Работа выполнена в Отделе новых методов ускорения ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1978

Zschornack G. et al.

P7 - 11876

Self-Consistent Dirac-Fock-Slater Calculations of the Energetic Shell Structure of Uranium Atoms and Its Ions

The energetic structure and the energies of various X-ray lines of Uranium in presence of different outer-shell vacancy states were computed by means of a Dirac-Fock-Slater program. The results were used to determine electron binding energies, total atomic energies for the separate vacancy states and X-ray energy shifts as a function of the ionization state from Uranium. In contrary to the increasing X-ray energies by removing electrons with the smallest binding energies a negative X-ray shift was found by the removal of electrons from the 4f-subshells.

The investigation has been performed at the Department of New Acceleration Methods, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1978

1. ВВЕДЕНИЕ

С развитием современных диагностических методов на основе спектроскопии характеристического рентгеновского излучения для анализа плазмы, ряда космических объектов, исследования процесса ионизации ионов в ионных источниках современных ускорителей тяжелых ионов и для диагностики электронно-ионных колец в прототипе коллективного ускорителя тяжелых ионов^{/1/} во все возрастающей степени увеличивается необходимость знания энергетической структуры оболочек атома как функции его ионизационного состояния.

Распределение вакансий в атомных оболочках определяет энергии рентгеновских переходов и влияет на их интенсивности. Изменение энергии уровней с увеличением степени ионизации, кроме того, определяет возможные переходы Оже- и Костера-Кронига внутри атома. Знание ограничений таких переходов важно для расчета вероятностей многократной ионизации при электронно-ионных столкновениях^{/2/}.

Настоящая работа продолжает цикл исследований о влиянии вакансий в атомных оболочках на энергетическую структуру оболочек атома и на энергию рентгеновских переходов. Знание сдвигов энергии рентгеновских переходов как функции числа внешних вакансий является основой анализа процесса ионизации ионов внутри электронных колец в коллективном ускорителе тяжелых ионов. Рассматривается изменение энергии уровней урана вплоть до ядра, полностью освобожденного от электронов.

2. ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫЕ МЕТОДЫ

Метод Дирака-Фока^{/6/}, являющийся релятивистским эквивалентом метода Хартри-Фока^{/3,4/}, позволяет учесть релятивистские эффекты при расчетах энергии атомных уровней. Преимущество такого способа состоит в том, что достигаемая точность на порядок выше по сравнению с нерелятивистскими расчетами /см. табл. 1/.

В уравнении типа Хартри-Фока получается нелокальный термпотенциал обмена, значительно усложняющий решение этих уравнений, так что даже с помощью современных вычислительных машин решение их требует сравнительно большой затраты машинного времени.

Слетер /9/ предложил заменить термы обмена, которые трактуются только с большими математическими трудностями, средним потенциалом обмена, что ведет к значительному упрощению уравнений Хартри-Фока или Дирака-Фока. Уравнения с учетом среднего потенциала обмена называют уравнениями Хартри-Фока-Слетера или Дирака-Фока-Слетера.

В результате использования метода Слетера достигается средняя плотность обмена и, соответственно, для всех атомных состояний - единый средний потенциал обмена.

В данной работе используется программа, составленная по методу Дирака-Фока-Слетера^{/7/}, которая рассчитывает самосогласованное потенциальное поле и радиальные орбитальные функции для атомов или ионов с использованием уравнения Дирака.

В приближении самосогласованного поля для изолированных атомов и ионов пишется волновая функция как отдельный определитель орбитальных функций по Слетеру. Эти функции удовлетворяют набору уравнений для единичных электронов в локальном сферическом потенциале, который имеет вклады от потенциала ядра, кулоновского потенциала распределения зарядов электронов и от потенциала обмена электронов. Как потенциал обмена используется потенциал Слетера.

$$V_A(r) = -\frac{3e^2}{2\pi} (3\pi^2\rho(r))^{1/3}, \quad /1/$$

Таблица 1

Отклонение рассчитанных энергий связи электронов К-оболочки для различных элементов нерелятивистским ($\Delta E_{нерел.}$)^{/6/} и релятивистским ($\Delta E_{рел.}$)^{/7/} путем по методу Хартри-Фока-Слетера от экспериментальных значений^{/8/}.

Элемент	^{10}Ne	^{20}Ca	^{30}Zn	^{40}Zr	^{50}Sn	^{60}Nd	^{70}Yb	^{80}Hg	^{90}Th	^{100}Fm
$\Delta E_{нерел.} / \%$	1,1	1,1	1,6	2,5	3,6	5,2	7,1	9,4	12,2	16,3
$\Delta E_{рел.} / \%$	0,06	0,02	0,4	0,2	0,05	0,1	0,2	0,3	0,5	0,08

где $\rho(r)$ - локальная плотность заряда электронов. Для больших расстояний от ядра в асимптотическое поведение потенциала внесены поправки по методу, предложенному Латером^{/10/}. Если принимается связь между орбитальным квантовым числом ℓ и спиновым квантовым числом s так, что

$$\begin{aligned} \ell' &= \ell + s & j &= \ell + \frac{1}{2}s = \ell' - \frac{1}{2}s \\ k &= -a(j + \frac{1}{2}) & a &= +1 \text{ если } \ell = j - \frac{1}{2} \\ & & & a = -1 \text{ если } \ell = j + \frac{1}{2}, \end{aligned} \quad /2/$$

где j - внутреннее квантовое число, то на основе уравнения Дирака можно получить дифференциальное уравнение для радиальных функций $A(r)$ и $B(r)$ в следующем виде:

$$\frac{d}{dr} \begin{pmatrix} A(r) \\ B(r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k/r & (V(r) - mc^2 - E_i)/ac \\ -(V(r) + mc^2 - E_i)/ac & k/r \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A(r) \\ B(r) \end{pmatrix}, \quad /3/$$

где $V(r)$ - потенциальная функция и E_i - энергия i -го состояния. Полученные уравнения являются системой двух связанных интегро-дифференциальных уравнений первого порядка. Поскольку эти уравнения носят нелинейный характер, они решаются итеративным путем, предложенным Хартри^{/11/}.

3. ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ СТРУКТУРА АТОМА УРАНА В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ИОНИЗАЦИОННОГО СОСТОЯНИЯ

С помощью вышеописанного метода рассчитаны энергетические положения атомных уровней с квантовыми числами $(n\ell j)$ для всех возможных степеней ионизации

атома урана. Рассматривается только основное состояние каждого иона. Принимается, что ион со степенью ионизации I образуется из иона со степенью ионизации $I-1$ вследствие высвобождения электрона, имеющего наименьшую энергию связи.

Табл. 2 содержит рассчитанные энергии уровней атома урана, полученные при решении релятивистского уравнения по методу Дирака-Фока-Слетера с учетом вклада взаимодействия обмена между электронами с помощью потенциала обмена по Слетеру^{/9/} и внесением для больших расстояний от ядра в асимптотическое поведение потенциала поправки по методу, предложенному Латером^{/10/}.

В табл. 3 сравниваются экспериментальные значения энергий связи отдельных уровней^{/7/} с расчетными значениями для нейтрального атома урана. Приведены результаты расчетов на основе метода Дирака-Фока $E_{DF}^{/12/}$ и метода Дирака-Фока-Слетера E_{DFS} . Принимается, что перестройка атомной оболочки происходит за время, значительно меньшее времени релаксации атомных состояний, т.е. интерпретируются собственные значения в смысле теоремы Коопмана, которая строго справедлива только в приближении Хартри-Фока. Однако, как показано раньше и как показывают наши расчеты /см. табл. 4/, можно использовать эту теорему при введении потенциала обмена по Слетеру.

Как следует из результатов, приведенных в табл. 2, в данной аппроксимации точность расчетов, полученная методом Дирака-Фока-Слетера, не сокращает точности расчетов по методу Дирака-Фока. Таким образом, использование приближения Дирака-Фока-Слетера по сравнению с методом Дирака-Фока, позволяет получить те же самые качественные результаты, но требует значительно меньших затрат машинного времени.

На рис. 1 представлена зависимость полной энергии атома E_t и ее отдельных компонентов /кинетическая энергия электронов E_k , потенциальная энергия электронов - ядро E_n , средняя энергия электростатического взаимодействия между электронами E_e и энергия обмена E_{ex} / от степени ионизации атома.

Рассчитанные энергии уровней атома урана в зависимости от степени ионизации /в эВ/. I - степень ионизации.

I	K	L _I	L _{II}	L _{III}	M _I	M _{II}	M _{III}	M _{IV}	M _V	N _I	N _{II}
0	II6265,5	2I795,7	2I046,9	I7I80,4	5528,2	5I82,7	4288,8	3736,0	3553,9	I42I,8	I264,5
I	II6273,9	2I804,1	2I055,3	I7I88,9	5536,6	5I9I,1	4297,2	3744,4	3562,3	I430,1	I272,9
2	II628I,6	2I8II,8	2I063,0	I7I96,6	5544,3	5I98,8	4304,9	3752,1	3570,0	I437,8	I280,6
3	II6290,2	2I820,4	2I07I,6	I7205,1	5552,8	5207,3	43I3,4	3760,6	3578,5	I446,3	I289,1
4	II6307,3	2I837,8	2I088,9	I7222,6	5570,6	5225,1	433I,2	3778,4	3596,3	I464,0	I306,8
5	II6326,0	2I856,9	2I107,9	I724I,4	5590,1	5244,6	4350,7	3797,9	36I5,8	I483,3	I326,1
6	II6346,0	2I877,4	2I128,3	I7262,2	561I,1	5265,5	437I,7	38I8,9	3636,7	I504,0	I346,8
7	II6353,1	2I894,3	2I145,2	I7279,0	5627,8	5282,3	4388,4	3835,6	3653,5	I520,6	I363,4
8	II6380,7	2I9II,8	2I162,8	I7296,5	5645,1	5299,6	4405,7	3852,9	3670,8	I537,8	I380,5
9	II6399,1	2I929,9	2I180,9	I73I4,6	5663,0	53I7,5	4423,6	3870,8	3688,7	I555,5	I398,3
10	II64I8,0	2I948,6	2I199,7	I7336,3	568I,5	5336,0	4442,1	3889,4	3707,2	I573,8	I4I6,6
11	II6439,2	2I969,3	2I220,4	I7353,1	570I,9	5356,5	4462,5	3909,8	3727,6	I593,9	I436,7
12	II646I,1	2I990,5	2I24I,8	I7375,3	5722,9	5377,4	4483,4	3930,7	3748,5	I6I4,6	I457,3
13	II6484,2	220I3,2	2I264,5	I7397,9	5745,3	5399,8	4505,8	3953,1	3770,9	I636,6	I479,4
14	II6508,0	22036,4	2I287,8	I742I,1	5768,1	5422,7	4528,6	3976,0	3793,8	I659,2	I502,0
15	II6540,8	22069,2	2I320,7	I7454,0	5800,3	5454,9	4560,7	4008,2	3826,0	I690,4	I533,2
16	II6574,5	22I03,0	2I354,5	I7487,7	5833,1	5487,9	4593,5	404I,3	3859,0	I722,2	I565,1
17	II6608,9	22I37,5	2I389,1	I7522,3	5866,7	552I,6	4627,1	4075,0	3892,7	I754,8	I497,6
18	II6644,2	22I72,9	2I421,5	I7557,6	590I,1	5556,0	466I,3	4I09,5	3927,1	I787,9	I630,8
19	II6680,4	22209,0	2I460,7	I7593,8	5936,2	559I,2	4693,3	4I44,8	3962,3	I82I,7	I664,6
20	II67I2,3	22246,0	2I497,7	I7630,7	5972,0	5627,1	4732,1	4I80,8	3998,2	I856,2	I699,1

Продолжение таблицы 2

I	N _{III}	N _{IV}	N _V	N _{VI}	N _{VII}	O _I	O _{II}	O _{III}	O _{IV}	O _V	O _{VI}
0	I030,0	777,7	734,3	40I,2	389,8	320,9	259,2	202,9	III,9	I03,5	8,5
I	I038,4	786,1	742,6	409,6	398,1	329,2	267,5	2II,3	I20,3	III,8	16,7
2	I046,1	793,7	750,3	417,3	405,8	335,9	275,2	2I9,0	I27,9	III,5	24,3
3	I054,6	802,3	758,8	425,8	4I4,3	345,4	288,7	227,4	I36,8	I27,9	32,6
4	I072,2	8I9,9	776,5	443,5	432,0	362,7	30I,0	244,5	I53,2	I44,6	47,8
5	I09I,5	839,2	795,7	462,8	45I,3	38I,5	3I9,6	262,9	I7I,2	I62,6	64,1
6	II12,1	859,8	8I6,3	483,5	472,0	40I,5	339,6	282,5	I90,4	I8I,6	
7	II28,7	876,4	832,9	500,0	488,5	4I7,7	355,7	298,6	206,3	I97,5	
8	II45,8	893,5	850,0	5I7,2	505,6	434,4	372,4	3I5,2	222,7	2I3,8	
9	II63,5	9II,2	867,7	534,8	523,3	45I,7	389,6	332,2	239,6	230,6	
10	II8I,7	929,4	885,9	553,1	54I,6	469,4	407,3	349,7	256,9	247,9	
11	I20I,8	949,5	906,0	573,1	56I,6	488,9	426,7	368,9	275,8	266,7	
12	I222,4	970,1	926,5	593,7	582,2	508,7	446,5	388,5	295,0	285,8	
13	I244,4	992,1	948,5	6I5,7	604,2	529,9	467,6	409,2	3I5,5	306,1	
14	I266,9	10I4,6	97I,0	638,2	626,6	55I,5	489,0	430,4	336,2	326,8	
15	I297,9	I045,6	I00I,9	669,2	657,6	580,0	5I7,3	457,8	362,8	353,1	
16	I329,5	I077,3	I033,6	700,8	689,2	609,0	546,0	485,6	389,8	379,8	
17	I36I,9	II09,6	I065,8	733,1	72I,4	638,5	575,2	5I3,9	4I7,2	406,9	
18	I394,8	II42,6	I098,6	766,0	754,3	668,4	604,8	542,6	445,1	434,5	
19	I428,3	II76,2	II32,2	799,6	787,8	698,8	634,9	57I,6	473,3	462,5	
20	I462,5	I2I0,4	II66,3	833,7	82I,9	729,5	665,3	60I,1	502,0		

Продолжение таблицы 2

I	P_I	P_{II}	P_{III}	P_{IV}	Q_I	I	N_{II}	N_{IV}	N_{V}
0	52,1	33,9	24,4	4,6I	5,7	46	2890,0	2650,9	2593,9
I	60,4	42,1	32,3		II,9	47	2960,6	2722,8	2665,0
2	68,0	49,6	39,8		II,3	48	3031,7	2795,3	2736,7
3	76,3	57,8	47,9			49	3103,3	2868,3	2808,9
4	90,7	71,7	61,0			50	3175,3	2941,9	2881,7
5	106,1	86,4	74,8			51	3247,9	3016,0	2955,0
6	122,2	101,8	89,4			52	3320,9	3090,6	
7	136,6	115,9	102,9			53	3395,1	3166,6	
8	151,4	130,3	116,7			54	3469,8	3243,1	
9	166,5	145,0	130,8			55	3544,8	3320,1	
10	182,0	160,0				56	3620,4		
11	198,4	176,0				57	3694,4		
12	215,2					58	3768,7		
13	232,7					59	3843,3		

Продолжение таблицы 2

I	K	L_I	L_{II}	L_{III}	M_I	M_{II}	M_{III}	M_{IV}	M_V	N_I	N_{II}
21	II6755,9	22284,5	21536,3	17659,3	6009,1	5664,3	4769,1	4218,1	4035,5	1691,8	1736,7
22	II6795,4	22323,8	21575,8	17708,6	6047,0	5702,3	4806,9	4256,2	4073,5	1928,0	1771,0
23	II6835,7	22364,0	21616,1	17748,8	6085,6	5741,0	4845,4	4295,0	4112,4	1964,9	1807,8
24	II6876,8	22404,9	21657,2	17789,7	6124,8	5780,4	4884,5	4334,5	4151,6	2002,3	1845,3
25	II6921,5	22447,8	21700,5	17832,7	6166,0	5821,7	4925,6	4375,8	4192,9	2041,7	1884,6
26	II6966,8	22491,4	21744,5	17876,3	6207,8	5863,6	4967,2	4417,7	4234,7	2081,5	1924,5
27	II7012,9	22535,6	21789,1	17920,6	6250,1	5906,1	5009,4	4460,2	4277,1	2121,7	1964,8
28	II7059,7	22580,5	21834,4	17965,5	6293,0	5999,2	5052,2	4503,2	4320,0	2162,5	2005,6
29	II7111,6	22629,2	21883,7	18014,2	6339,2	5995,6	5098,3	4549,6	4366,3	2206,2	2049,3
30	II7164,2	22678,5	21933,6	18063,5	6386,0	6042,6	5144,9	4596,6	4413,2	2250,4	2093,5
31	II7217,1	22728,6	21984,2	18113,6	6433,9	6090,7	5192,0	4644,5	4461,1	2295,5	2138,7
32	II7270,7	22779,4	22035,4	18164,3	6482,2	6139,2	5240,8	4693,1	4510,0	2341,1	2184,3
33	II7324,5	22852,7	22106,3	18237,6	6536,6	6213,3	5314,5	4757,2	4583,5	2405,9	2249,2
34	II7416,0	22927,4	22182,7	18312,3	6631,6	6288,8	5389,6	4842,7	4659,0	2471,6	2315,0
35	II7490,8	23003,7	22258,7	18388,6	6708,5	6365,8	5466,1	4919,8	4735,9	2538,1	2381,8
36	II7567,1	23081,5	22336,0	18466,6	6786,7	6444,1	5543,9	4998,2	4814,2	2605,5	2449,3
37	II7644,8	23160,8	22414,9	18545,5	6866,4	6524,0	5623,2	5078,0	4894,0	2673,8	2517,8
38	II7723,9	23241,5	22495,2	18626,2	6947,5	6605,2	5703,8	5159,3	4975,2	2743,6	2587,2
39	II7804,5	23323,7	22577,0	18708,4	7029,9	6687,8	5785,7	5242,0	5057,7	2812,9	2657,4
40	II7886,5	23407,4	22660,3	18792,0	7113,7	6771,8	5868,9	5325,1	5141,6	2883,7	2728,4
41	II7970,9	23493,6	22746,0	18878,2	7199,6	6858,0	5954,3	5412,3	5227,8	2955,5	2800,5
42	II8056,8	23581,3	22833,3	18965,9	7286,9	6945,6	6041,0	5500,1	5315,4	3028,2	2873,6
43	II8144,1	23670,5	22922,0	19055,0	7375,6	7034,6	6129,0	5589,2	5404,3	3101,7	2947,4
44	II8232,9	23761,2	23012,3	19145,7	7465,6	7124,9	6218,2	5679,7	5494,6	3175,9	3022,0
45	II8323,1	23853,3	23103,9	19237,8	7556,8	7216,6	6308,8	5771,5	5586,2	3250,9	3097,4

I	N _{II}	N _{IV}	N _V	N _{VI}	N _{VII}	O _I	O _{II}	O _{III}	O _{IV}
21	I497,8	I245,7	I201,6	869,0	857,2	761,1	696,5	631,2	531,3
22	I533,8	I281,7	I237,4	905,0	893,1	793,0	728,2	661,7	561,0
23	I570,3	I318,3	I273,9	941,5	929,5	825,3	760,2	692,6	591,2
24	I607,3	I355,4	I310,9	978,5	966,5	858,0	792,5	723,7	
25	I646,3	I394,3	I349,7	1017,4	1005,4	891,8	825,0	756,0	
26	I685,7	I433,8	I389,0	1056,7	1044,7	926,0	859,8	788,5	
27	I725,5	I473,6	I428,7	1096,6	1084,4	960,3	893,9	821,2	
28	I765,8	I514,0	I468,9	1136,9	1124,7	995,0	928,2		
29	I809,0	I557,2	I511,9	1180,1	1157,7	1031,4	964,2		
30	I852,5	I600,8	I555,3	1223,7	1211,2	1058,0			
31	I897,1	I645,4	I599,7	1268,3	1255,7	1105,3			
32	I942,0	I690,4	I644,5	1313,3	1300,7				
33	2004,4	I753,2	I706,6	1377,3	1364,4				
34	2067,7	I816,9	I769,6	1442,4	1429,2				
35	2131,7	I881,6	I833,6	1508,6	1495,1				
36	2196,6	I947,1	I898,3	1575,8	1561,9				
37	2262,3	2013,5	1964,0	1644,1	1629,9				
38	2328,8	2080,8	2030,5	1713,4	1698,9				
39	2396,1	2148,9	2097,8	1783,8	1768,9				
40	2464,1	2217,9	2186,0	1855,1					
41	2533,2	2288,0	2235,2	1927,8					
42	2603,1	2358,9	2305,4	2001,5					
43	2673,7	2430,7	2376,3	2076,2					
44	2745,1	2503,3	2448,0	2152,0					
45	2817,2	2576,7	2520,6	2228,6					

I	K	L _I	L _{II}	L _{III}	M _I	M _{II}	M _{III}	M _{IV}	M _V	N _I	N _{II}
46	II8414,7	23946,9	23197,1	19331,3	7649,4	7309,5	6400,5	5864,7	5679,2	3326,6	3173,5
47	II8512,7	24043,9	23294,7	19428,4	7737,3	7398,3	6487,6	5954,1	5768,0	3399,6	3247,0
48	II8611,9	24142,0	23393,5	19526,6	7826,1	7488,0	6575,6	6044,4	5857,8	3473,1	3320,9
49	II8712,3	24241,3	23493,5	19625,9	7915,7	7578,5	6664,4	6135,6	5948,4	3547,1	3395,5
50	II8813,8	24341,7	23594,6	19726,3	8006,3	7670,0	6754,0	6227,7	6040,0	3621,6	3470,5
51	II8916,6	24443,2	23696,9	19827,0	8097,6	7762,3	6844,5	6320,8	6132,4	3696,6	3546,0
52	II9020,6	24545,8	23800,4	19930,6	8189,9	7855,5	6935,8	6414,7	6225,8	3772,0	3622,0
53	II9129,2	24652,2	23907,8	20037,1	8284,6	7951,3	7029,5	6511,3	6321,7	3848,8	3699,4
54	II9239,1	24759,8	24016,6	20144,8	8380,3	8048,1	7124,1	6608,3	6418,5	3926,0	3777,2
55	II9350,2	24868,5	24126,4	20253,6	8476,7	8145,6	7219,6	6707,1	6516,1	4003,5	3855,5
56	II9462,6	24978,4	24237,5	20363,6	8574,1	8244,1	7315,8	6805,4	6614,7	4081,5	3934,2
57	II9557,8	25084,3	24345,5	20469,7	8668,3	8339,5	7409,2	6902,0	6709,7	4157,9	4011,3
58	II9694,2	25191,1	24454,5	20576,7	8763,2	8435,6	7503,1	6998,3	6805,4	4234,5	4088,7
59	II9811,6	25298,8	24564,4	20684,6	8858,8	8532,4	7597,8	7095,3	6901,7	4311,3	4166,3
60	II9930,1	25407,3	24675,3	20793,3	8955,0	8629,8	7693,0	7192,9	6998,8	4388,3	4244,1
61	I20063,1	25525,3	24796,0	20911,2	9058,1	8734,3	7794,8	7297,6	7102,6	4468,7	4325,4
62	I20197,3	25664,2	24917,7	21030,2	9161,9	8839,6	7897,3	7403,0	7207,2	4549,5	
63	I20325,5	25759,9	25035,6	21145,8	9264,2	8943,2	7998,4	7506,9	7310,4	4630,8	
64	I20454,8	25876,6	25154,5	21262,3	9367,2	9047,6	8100,3	7611,6	7414,3		
65	I20671,7	26087,7	25368,6	21473,6	9530,4	9216,0	8259,2	7784,4	7584,2		
66	I20890,9	26300,8	25584,8	21686,9	9694,5	9385,5	8419,1	7958,5	7755,4		
67	I21112,6	26516,0	25803,2	21902,3	9859,8	9656,2	8580,2	8134,0	7928,0		
68	I21336,5	26733,2	26023,8	22119,7	10026,0	9728,0	8742,3	8310,7	8101,9		
69	I21562,9	26952,4	26246,5	22339,1	10193,2	9900,9	8905,6	8488,9	8277,0		
70	I21791,6	27173,5	26471,3	22560,4	10364,3	10074,8	9069,7	8668,2			

I	K	L _I	L _{II}	L _{III}	M _I	M _{II}	M _{III}	M _{IV}	M _V	M _{VI}
71	I22033,5	27404,4	26707,1	22791,7	I0533,1	I0252,9	9237,5	8852,1		
72	I22278,0	27637,2	26945,1	23025,1	I0705,8	I0432,0	9406,2	9037,1		
73	I22525,2	27872,1	27185,4	23260,4	I0879,5	I0612,1	9576,0	9223,4		
74	I22774,9	28108,8	27427,7	23497,7	I1053,9	I0793,1	9746,6			
75	I23024,7	28323,1	27650,5	23712,7	I1216,3	I0961,3	9906,2			
76	I23276,5	28538,7	27874,8	23929,1	I1379,0	I1130,0	I0066,2			
77	I23530,2	28755,7	28100,5	24146,8	I1541,8	I1298,8	I0226,3			
78	I23785,9	28974,0	28327,7	24365,8	I1705,1	I1468,1				
79	I24083,4	29214,6	28579,7	24606,6	I1877,5	I1647,6				
80	I24383,2	29456,5	28833,2	24848,6	I2050,5					
81	I24656,5	29688,5	29069,1	25075,1	I2225,6					
82	I24932,3	29914,8	29308,1	25307,0						
83	I25521,1	30332,7	29770,6	25730,8						
84	I26114,0	30751,3	30234,4	26155,6						
85	I26711,0	31171,0	30699,4	26581,6						
86	I27311,7	31591,0	31164,7							
87	I28059,9	32051,7	31683,9							
88	I28810,2	32512,9								
89	I29447,3	32979,5								
90	I30224,4									
91	I32256,3									

Таблица 3

Сравнение экспериментальных (E)^{/8/} и рассчитанных энергий уровней нейтрального атома урана. ΔE соответствует разнице между экспериментальным и рассчитанным значениями энергии уровней /в %/.

Уровень	E /эВ	E _{DF} /эВ	ΔE	E _{DF3} /эВ	ΔE
K	I15606,1±1,6	I16353,1	0,65	I16265,5	0,57
L _I	21757,4±0,3	21918,6	0,74	21795,7	0,18
L _{II}	20947,6±0,3	20837,8	0,52	21046,9	0,47
L _{III}	17166,3±0,3	17280,6	0,67	17180,4	0,08
M _I	5548,0±0,4	5402,0	2,63	5528,2	0,36
M _{II}	5182,2±0,4	5249,7	0,63	5182,7	0,01
M _{III}	4303,4±0,3	4315,7	0,29	4288,8	0,34
M _{IV}	3726,6±0,3	3779,2	1,41	3736,0	0,25
M _V	3551,7±0,3	3595,8	1,24	3553,9	0,06
N _I	1440,8±0,9	1476,3	2,46	1421,8	1,38
N _{II}	1272,6±0,3	1309,8	2,92	1264,5	0,64
N _{III}	1044,9±0,3	1074,5	2,83	1030,0	1,43
N _{IV}	780,4±0,3	807,9	3,52	777,7	0,35
N _V	737,7±0,3	764,1	3,58	734,3	0,46
N _{VI}	391,3±0,6	419,1	7,10	401,2	2,53
N _{VII}	380,9±0,9	401,2	5,33	389,8	2,34
O _I	323,7±1,1	341,9	5,62	320,9	0,86
O _{II}	259,3±0,5	275,7	6,21	259,2	0,07
O _{III}	195,1±1,3	219,1	12,30	202,9	4,00
O _{IV}	105,0±0,5	119,6	13,90	111,9	6,57
O _V	96,3±1,4	108,2	12,36	103,5	7,48
P _I	70,7±1,2	57,7	18,39	52,1	26,31
P _{II}	42,3±9,0	37,1	12,29	33,9	19,86
P _{III}	32,3±9,0	26,1	19,20	24,4	24,46

Таблица 4

Сравнение энергий собственных значений E_{DFS} и энергий связи E_{DFS}^B с экспериментальными значениями энергии уровней E . Z - атомный номер.

Z	УРОВЕНЬ	$E / \text{эВ}$	$E_{DFS} / \text{эВ}$	$E_{DFS}^B / \text{эВ}$
54	K	34561,4±1,1	34559,7	34645,2
54	L _{III}	4782,2±0,4	4774,6	4786,2
54	M _{III}	937,0±2,1	926,5	928,5
54	M _{IV}	672,3±0,5	677,4	664,6
54	N _{III}	146,7±3,1	148,0	144,5
82	K	88004,5±0,7	88353,4	88534,3
82	L _{III}	13035,2±0,3	13038,3	13071,8
82	M _{III}	3066,4±0,4	3053,4	3064,8
82	M _{IV}	2484,0±0,3	2487,5	2476,5
82	N _{III}	644,5±0,6	633,4	638,0
82	O _I	147,3±0,8	152,0	152,6
92	K	116606,1±1,6	116265,5	116502,8
92	L _{III}	17166,3±0,3	17180,4	17224,6
92	M _{III}	4303,4±0,3	4288,8	4305,2
92	M _{IV}	3551,7±0,3	3553,9	3542,3
92	N _{III}	1044,9±0,3	1030,0	1036,5
92	O _I	323,7±1,1	320,9	320,9
92	P _{III}	32,3±9,0	24,3	20,4

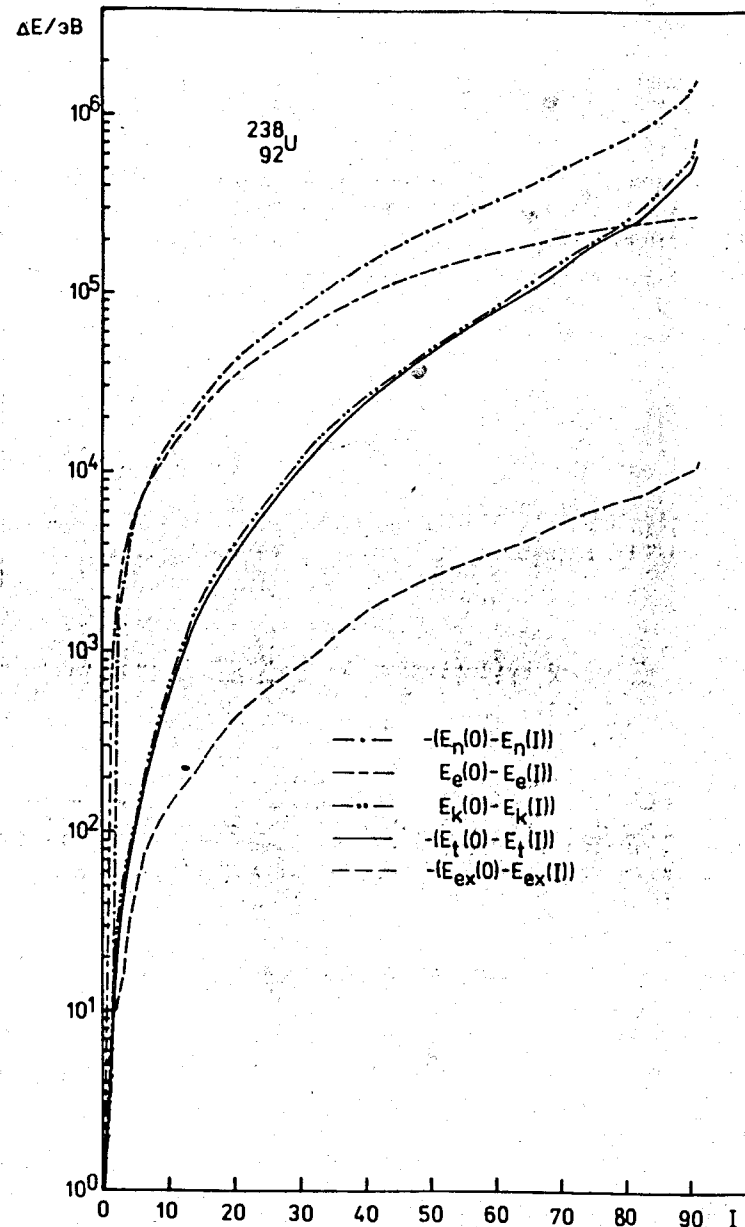


Рис. 1. Зависимость полной энергии атома урана E_t и ее отдельных компонентов от степени ионизации атома. I - степень ионизации.

4. СДВИГИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛИНИЙ

При расчете сдвигов рентгеновских линий в зависимости от ионизационного состояния атома урана принимается, что как образование дырок во внутренних оболочках атома, так и заполнение их электронами из расположенных выше оболочек происходит за время, значительно меньшее времени релаксации атомных состояний, т.е. при этом условии возможно использовать для расчета энергии рентгеновских линий энергии уровней атомных состояний перед возникновением вакансий внутри атома.

В табл. 5 сравниваются экспериментальные значения энергии рентгеновских переходов с расчетными значениями для нейтрального атома урана. Приведены результаты расчетов на основе той же самой модели, которая использовалась для расчетов энергии связи нейтрального атома в табл. 3. Как видно из табл. 5, при предполагаемой аппроксимации метод Дирака-Фока-Слетера дает в сравнении с методом Дирака-Фока энергии рентгеновских переходов, почти не отличающиеся от энергий, рассчитанных первым методом. Даже для целого ряда переходов метод Дирака-Фока-Слетера дает переходные энергии, более близкие к экспериментальным значениям, чем результаты, полученные по методу Дирака-Фока.

Рассчитанные из энергий атомных уровней урана, приведенных в табл. 2, сдвиги некоторых рентгеновских переходов в зависимости от степени ионизации атома, представлены на рис. 2.

Энергии рентгеновских переходов нарастают при последовательном удалении электронов из O, P- и Q-уровней. Однако при удалении электронов из 4f-подоболочек можно наблюдать противоположное поведение сдвигов рентгеновских энергий. Расчеты для ряда других элементов, имеющих полностью или частично заполненные электронами 4f-подоболочки, в том числе свинец и гафний, показывают тот же самый эффект, который был обнаружен у урана.

На рис. 3 показан прирост энергии связи электронов K-, L_{III}- и M_{III}-уровней при последовательном удале-

Таблица 5

Сравнение экспериментальных (E) и рассчитанных значений энергий рентгеновских переходов K- и L-серий нейтрального атома урана, ΔE соответствует разнице между экспериментальным и рассчитанным значениями рассматриваемого перехода.

Переход	E/эВ	E _{DF} /эВ	ΔE/%	E _{DF5} /эВ	ΔE/%
K _{α1} (K L _{III})	89439±2,3	99073	0,64	99085	0,66
K _{α2} (K L _I)	94665±2,9	95515	0,90	95219	0,59
K _{β3} (K M _I)	110406±3,9	111103	0,63	111083	0,61
K _{β1} (K M _{II})	111300±5,0	112037	0,66	111977	0,61
K _{β2} ^I (K N _I)	114400±10,6	115043	0,56	115001	0,52
K _{β2} ^I (K N _{II})	114600±10,6	115279	0,59	115236	0,56
L _{β3} (L _I M _{III})	17455±0,5	17603	0,85	17507	0,30
L _{γ2} (L _I M _I)	20485±0,3	20609	0,60	20531	0,23
L _{γ3} (L _I M _{II})	20713±0,3	20844	0,63	20766	0,25
L _γ (L _I M _I)	15400±0,3	15436	0,23	15519	0,77
L _{β1} (L _I M _{IV})	17220±0,2	17059	0,94	17493	1,58
L _{γ1} (L _I M _{IV})	20167±0,3	20030	0,68	20269	0,51
L _{γ6} (L _I O _{IV})	20843±0,3	20718	0,60	20935	0,44
L _ε (L _I M _I)	11618±0,2	11879	2,44	11652	0,29
L _{α2} (L _{II} M _{IV})	13439±0,1	13501	0,64	13444	0,04
L _{α1} (L _{II} M _{IV})	13615±0,1	13685	0,51	13627	0,08
L _{β6} (L _{II} M _I)	15726±0,4	15804	0,50	15759	0,21
L _{β2} (L _{II} M _{IV})	16428±0,2	16517	0,51	16446	0,11

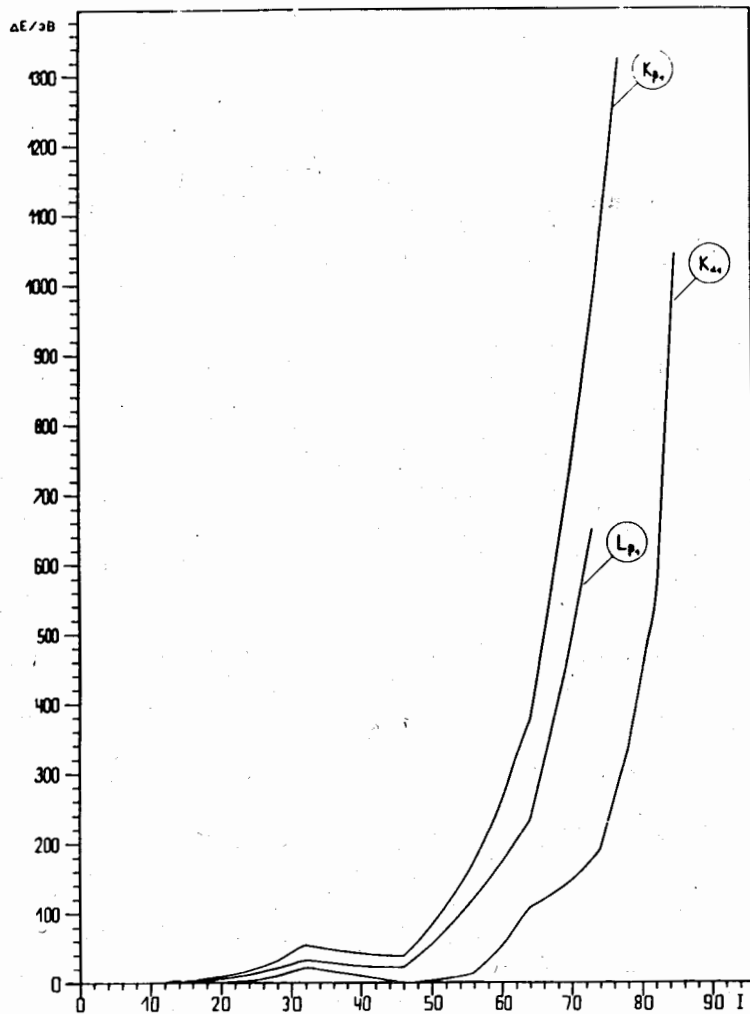


Рис. 2. Энергетические сдвиги выбранных рентгеновских переходов атома урана как функции ионизационного состояния атома.

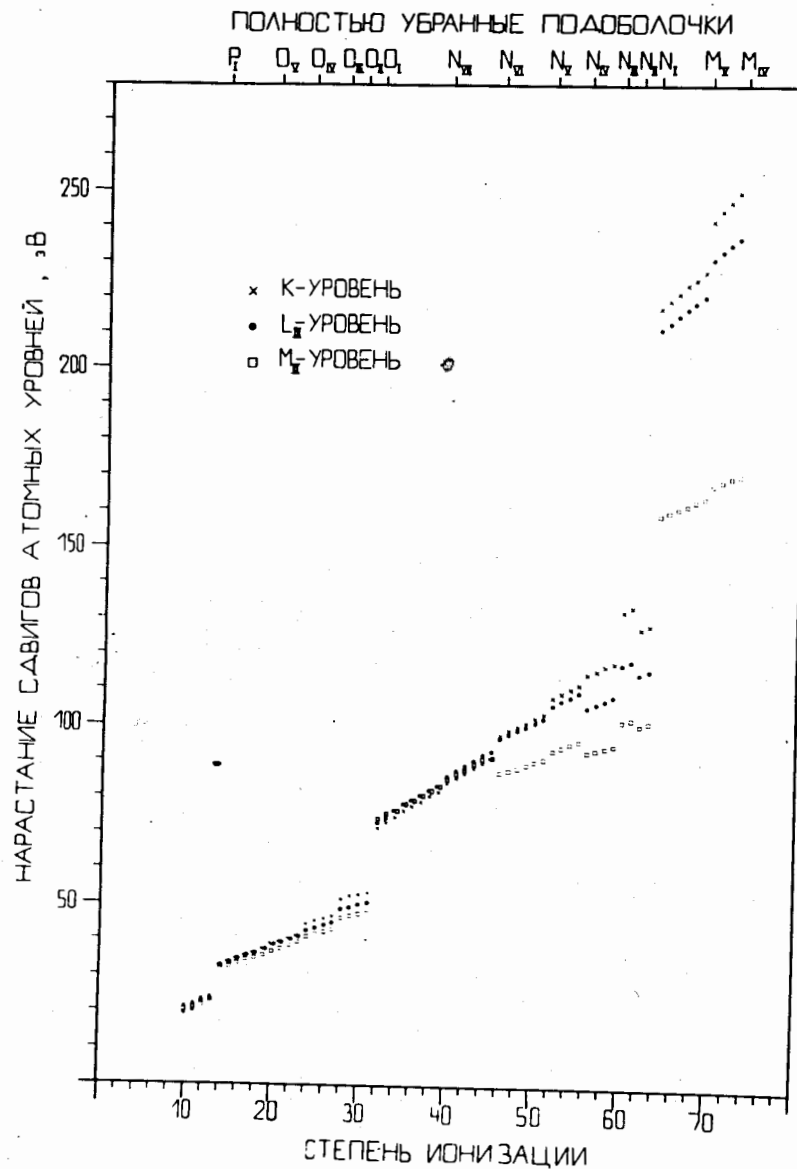


Рис. 3. Прирост энергии связи электронов K -, L_{III} - и M_{III} -уровней как функции ионизационного состояния атома урана.

нии электронов с наименьшими энергиями связи. Вообще изменение энергии связи электронов К-оболочки превышает изменение энергии связи других электронных состояний. Отклонение появляется только там, где удаляются электроны из 4f-подоболочек.

Такое поведение можно понять, исходя из очень простой модели атомной оболочки - а именно - модели Слетера. В этой модели средний потенциал электрона $V(r)$ в атоме принимается равным

$$V(r) = -\frac{Z^*(r)}{r} \quad /4/$$

Средний потенциал, в том числе радиальная плотность заряда электронов, является функцией эффективного заряда ядра

$$Z^*(r) = Z - \sigma(r), \quad /5/$$

где описывается $\sigma(r)$ экранирование, с которым определен электрон экранируется от поля ядра и от поля, образованного всеми остальными электронами на расстоянии r от ядра. Так как энергии различных состояний электронов в атоме пропорциональны квадрату эффективного заряда ядра, ожидается, что вышеописанное поведение сдвигов рентгеновских энергий переходов объясняется различным изменением экранирования электронов тех состояний, которые связаны с рассматриваемыми рентгеновскими переходами.

В качестве примера рассмотрим поведение радиальных волновых функций, полученных из расчетов типа Дирака-Фока-Слетера. На рис. 4 и 5 представлено произведение $r\Psi(r)$ радиуса r и большого компонента радиальной волновой функции $\Psi(r)$ как функция расстояния от ядра /в единицах радиуса Бора a_0 /. Показана та область, в которой справедливо неравенство $|\Psi(r)|^2 > 10^{-4}$. Из этих рисунков видно, что электроны, занимающие 4f-подоболочки, находятся на относительно большом радиальном расстоянии от ядра. Однако электроны со сравнительно низкими главными и побочными квантовыми числами сконцентрированы ближе к ядру. Это совпадает с общей тенденцией нахождения

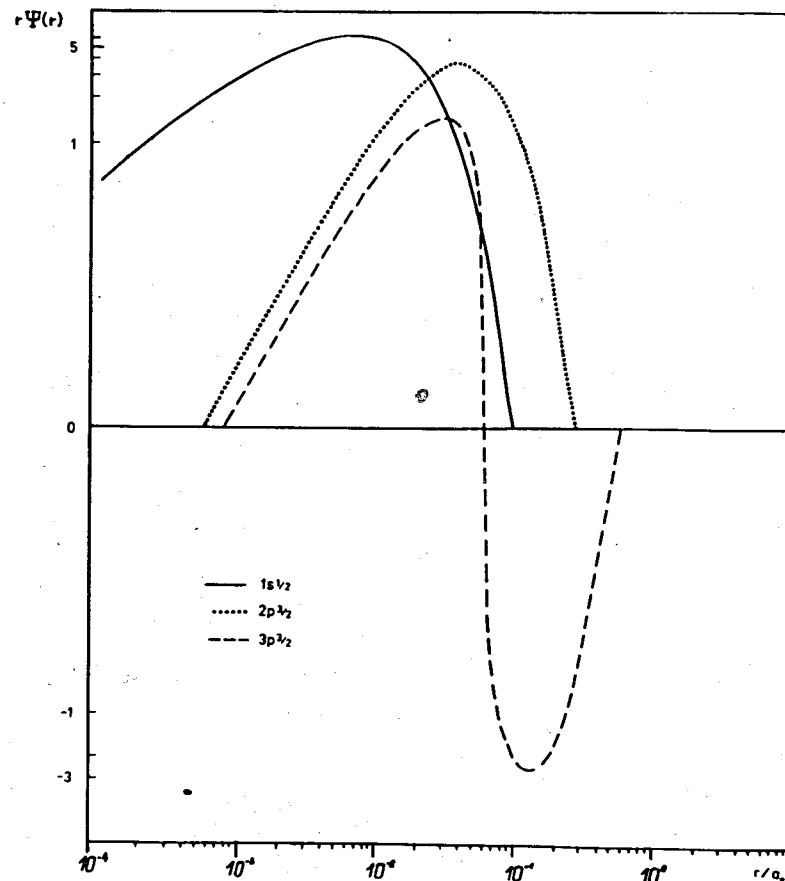


Рис. 4. Ход большого компонента радиальной волновой функции для выбранных состояний электронов атома урана.

волновых функций связанного состояния с низким главным квантовым числом в узком радиальном диапазоне. В отличие от этой общей тенденции, электроны 4f-подоболочек находятся, по сравнению с другими состояниями электронов с большими главными и побочными квантовыми числами, в маленьком радиальном диапазоне. Поэтому изменение плотности электронов 4f-оболочек при уменьшении числа заполнения этих состояний меньше влияет на экранирование электронов К-оболочки,

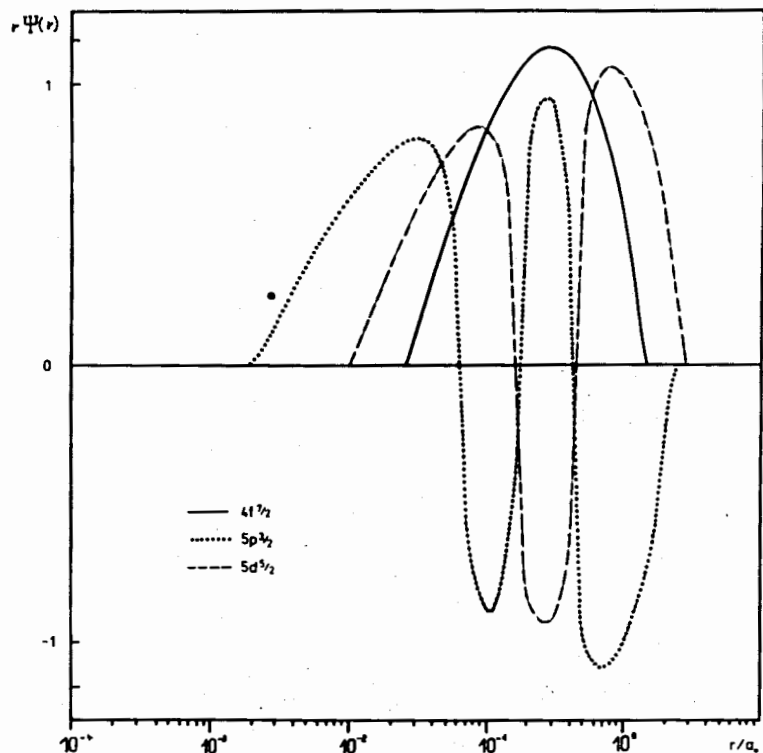


Рис. 5. Ход большого компонента радиальной волновой функции для выбранных состояний электронов атома урана.

чем на расположенные выше состояния, но на состояния с высшими квантовыми числами на основании их радиального распределения изменение экранирования при удалении электронов из 4f-подоболочек оказывает более существенное влияние. Вследствие такого эффекта изменение энергии связи электронов К-оболочки будет меньше, чем для расположенных выше уровней, что является причиной отрицательных сдвигов энергии рентгеновских переходов.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Описанная выше особенность поведения сдвигов энергий рентгеновских лучей является важным эффектом, который необходимо иметь в виду при анализе характеристического рентгеновского излучения с целью определения ионизационного состояния атома. Чтобы проверить этот эффект, проводились также расчеты с помощью программы, составленной по методу Хартри-Фока-Слетера, описанной в ^{16/}. При этом получены те же самые качественные результаты, что еще раз подтверждает существование найденного эффекта.

Дальнейшее усовершенствование коллективного ускорителя ОИЯИ на базе электронных колец даст нам возможность экспериментальной проверки существования вышеописанного эффекта посредством измерений характеристического рентгеновского излучения ионов, находящихся внутри электронного кольца.

ЛИТЕРАТУРА

1. Зиберт Х.-У. и др. ОИЯИ, Р9-9366, Дубна, 1975.
2. Salop A. Phys. Rev., 1973, A8, p.3032.
3. Fock V. Z.Phys., 1930, 61, p.126.
4. Fock V. Z.Phys., 1930, 62, p.795.
5. Grant I.P. Adv. Phys., 1970, 19, p.747.
6. Hermann F., Skillman S. Atomic Structure Calculations, Prentice-Hall, Inc. Englewood Cliffs, New Jersey, 1963.
7. Liberman D.A., Gromer D.T., Waber J.T. Comp. Phys. Commun., 1971, 2, p.107.
8. Bearden J.A., Burr A.F. Rev.Mod. Phys., 1967, 39, p.125.
9. Slater J. Phys.Rev., 1951, 81, p.385.
10. Latter R. Phys.Rev., 1955, 99, p.510.
11. Hartree D.R. The Calculation of Atomic Structures, Wiley, New York, 1957.
12. Desclaux J.P. Comp. Phys. Commun., 1975, 9, p.31.

Рукопись поступила в издательский отдел
6 сентября 1978 года.