

## ФУНДАМЕНТАЛЬНІ НАУКИ

УДК 538.97Ф405

### ВІДНОШЕННЯ ІНТЕГРАЛЬНИХ ПЕРЕРІЗІВ ІОНІЗАЦІЇ L — ПІДОБОЛОНОК АТОМІВ ВОЛЬФРАМУ ПРИ ЕЛЕКТРОННОМУ УДАРІ

Кандидат фізико-математичних наук Боровий М.О.,  
кандидат фізико-математичних наук Іщенко Р.М.

Експериментально досліджено відносно інтенсивність  $L\beta_1$ -,  $L\beta_{2,15}$ - та  $L\beta_3$ - ліній рентгенівського емісійного  $L\beta$ - спектру атомів вольфраму при електронному бомбардуванні зразка у діапазоні прискорюючих напруг  $U=(13\pm 35)\text{кВ}$ . За отриманими даними визначено відношення інтегральних перерізів іонізації  $L_1$ -,  $L_2$ -,  $L_3$ - підоболонки  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$ .

The relative intensities of tungsten atoms X-ray emission  $L\beta_1$ -,  $L\beta_{2,15}$ - and  $L\beta_3$ - lines are experimentally investigated at electron bombardment in a range of accelerating voltage  $U=(13\pm 35)\text{kV}$ . On the basis of the received experimental data the ratios of  $L_1$ -,  $L_2$ -,  $L_3$ - subshells integral ionization cross sections  $\sigma_2/\sigma_1$  and  $\sigma_3/\sigma_1$  are determined.

**Постановка проблеми.** Інтегральний переріз іонізації (ІПІ) електронної оболонки є важливою характеристикою процесу взаємодії атома з налітаючою частинкою (фотонем, електроном тощо). Зокрема, при електронному бомбардуванні особливе значення мають ІПІ глибоких К- та L-оболонки, оскільки коректність їх визначення безпосередньо впливає на точність результатів кількісного рентгенівського електроннозондового мікроаналізу. Однак, до цього часу немає єдиного підходу щодо обчислення ІПІ К-оболонки та  $L_i$ -підоболонки ( $i=1-3$ ) атомів та іонів в області проміжних ( $1.25 < \varepsilon < 4$ ) та, особливо, біляпорогових ( $\varepsilon < 1.25$ ) енергій налітаючих електронів ( $\varepsilon = E/E_i$  — перевищення енергії налітаючого електрона ( $E$ ) над потенціалом іонізації ( $E_i$ ) відповідної оболонки чи підоболонки).

**Аналіз літературних джерел.** Послідовні квантово-механічні розрахунки ІПІ методами збіжного сильного зв'язку (ЗСЗ) та R-матриці фактично обмежуються розглядом процесів іонізації та збудження електронних оболонок атомів легких елементів  $Z < 15$  (наприклад, [1-3]). Натомість для  $Z > 15$  широко представлено розрахунки, що базуються на теорії збурень, а саме, першому борнівському наближенні. Зокрема, при використанні спотворених плоских хвиль у цьому наближенні досить вдалим є обчислення ІПІ глибоких електронних оболонок багатьох високозарядних іонів в області проміжних та високих енергій налітаючих електронів [4]. Але й до цього часу досить поширеним залишається плоскохвильове борнівське наближення (ПБН). Привабливість саме такого підходу полягає в тому, що він дає відносно простий аналітичний вираз для визначення ІПІ (формула Бете та її модифікації [5]), основними параметрами якого є кількість електронів ( $n_i$ ) у  $i$ -оболонці (підоболонці) та перевищення  $\varepsilon$ . Однак, дана модель справедлива лише при великих перевищеннях  $\varepsilon \gg 1$  (як правило, достатньо  $\varepsilon > 4$ ). Тому для використання формули Бете при проміжних та, особливо, біляпорогових енергіях налітаючого електрона до формули вводять корегуючі функції, що забезпечують погодження розрахунків з відомими експериментальними значеннями ІПІ в області  $\varepsilon < 4$ , зберігаючи Бете-асимптотику при  $\varepsilon \gg 1$ . Такий напівемпіричний підхід щодо модифікації формули Бете реалізовано у багатьох роботах (наприклад, [6-8]). Однак, явний вигляд корегуючих функцій в усій області перевищень  $\varepsilon > 1$  підібрано лише для К-оболонки, а спроби визначення корекцій для  $L_i$ -підоболонки обмежуються областю  $\varepsilon > 1.25$ . Отже, у біляпороговій області  $\varepsilon < 1.25$  для  $L_i$ -підоболонки вигляд корегуючих функцій у формулі Бете фактично невідомий. Нарешті, до опису процесу іонізації атома електронним ударом досить широко застосовується і класична модель бінарних співударів (КБС) [9], яка дозволяє отримати аналітичний вираз для ІПІ також у вигляді функції від  $n_i$  та  $\varepsilon$ . Вважається, що модель КБС, як і ПБН, є коректною лише при великих перевищеннях  $\varepsilon \gg 1$ .

Особливо складним процес біляпорогової іонізації K- та L-оболонки виглядає для атомів важких елементів  $Z > 70$  з незаповненими зовнішніми електронними оболонками. У цьому випадку розрахунки ІПІ методами ЗСЗ чи R-матриці взагалі навряд чи можливі через необхідність врахування дуже великої кількості відкритих та закритих каналів розпаду. Отже, задача підбору найбільш вдалих параметрів напівемпіричного опису ІПІ для цієї групи елементів є актуальною. Її розв'язок для ІПІ  $L_i$ -підоболонки може бути отриманий через експериментальне визначення відношень інтегральних перерізів  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$  ( $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$  — ІПІ  $L_1-, L_2-, L_3$ -підоболонки відповідно), зокрема, за відносною інтенсивністю  $L\beta_1$  (перехід  $L_2-M_4$ ),  $L\beta_{2,15}$  ( $L_3-N_{3,4}$ ),  $L\beta_3$  ( $L_1-M_3$ ) та  $L\beta_6$  ( $L_3-N_1$ ) ліній рентгенівського емісійного  $L\beta$ -спектру [10]. Хоча такий метод і не дозволяє визначити абсолютні значення ІПІ  $L_i$ -підоболонки, однак для з'ясування питання про коректність тієї чи іншої моделі розрахунку ІПІ він є досить чутливим. Особливо це стосується біляпорогової області перевищень  $\epsilon$ , оскільки істотне зростання відношень  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$  при наближенні до порогів дозволяє чіткіше виявити відмінності між теоретичними розрахунками цих відношень у різних наближеннях та експериментом.

**Мета роботи.** У представленій роботі ставилося за мету проведення експериментального дослідження відношень перерізів іонізації  $L_1-, L_2-, L_3$ -підоболонки атомів вольфраму (W)  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$  електронним ударом у діапазоні прискорюючих напруг  $U=(13\div 35)$  кВ ( $1 < \epsilon < 3$ ) та порівняння отриманих відношень перерізів з розрахованими за різними моделями.

**Основна частина.** Рентгенівські емісійні  $L\beta$ -спектри W реєструвалися у режимі покрокового сканування (крок  $\Delta\theta = (0.01 \div 0.03)^\circ$  — у шкалі енергій  $\Delta E=(2\div 4)$  еВ) з заданим числом імпульсів, що накопичуються (N). Необхідність прийнятної тривалості експерименту при біляпороговому збудженні ( $U=13-14$  кВ) змусила обмежитися  $N=10^4$  імп., що відповідає відносній похибці накопичення імпульсів  $dN=1.0\%$ ; при більш високих напругах ( $U=15\div 35$  кВ)  $N=4\cdot 10^4$ ,  $\delta N=0.5\%$ . Обернена лінійна дисперсія спектрометра в області  $L\beta_1$ -лінії — 38 еВ/мм. Отже, при ширині вхідної щілини детектора  $d=0.1$  мм абсолютна похибка визначення енергії не перевищувала 4 еВ.

Темними кружками на рис. 1 позначено експериментальні точки, штриховими лініями — компоненти розкладу спектрів та фон, суцільними лініями — суми компонентів розкладу з урахуванням фону. Кожна з ліній  $L\beta$ -спектру W апроксимувалася однією функцією Фойгта. Як відомо, короткохвильові  $L\beta_{25}$ -сателіти W (на рис. 1 їх позначено як  $\beta_{25}$ ) мають двохкомпонентну структуру, тому для їх апроксимації було використано дві функції Фойгта. Крім того, найкраща мінімізація нев'язок досягалася в тому випадку, коли поряд з основними компонентами  $\beta$  — спектру враховувалося існування добре вираженої низькоенергетичної складової  $\beta_x$ . Таким чином, повний  $L\beta$ -контур W апроксимувався за допомогою восьми функцій Фойгта (див. рис. 1).

Відносні інтенсивності  $L\beta_1-, L\beta_{2,15}-$  та  $L\beta_3-$  ліній W визначалися як відношення площ під експериментальними контурами цих ліній. Відносна похибка визначення відносної інтенсивності  $L\beta_1-, L\beta_{2,15}-$  та  $L\beta_3-$  ліній W за даних експериментальних умов складала (3–4) %.

Запишемо співвідношення між експериментально визначеною відносною інтенсивністю  $L\beta_1-, L\beta_{2,15}-$  та  $L\beta_3-$  ліній та величинами  $\sigma_2/\sigma_1$  і  $\sigma_3/\sigma_1$ . Будемо враховувати, що при обробці спектрограм з загальних контурів ліній не виділялися сателіти кратної іонізації, які відповідають радіаційним переходам у LM-, LX-, LMX- та LXY- іонізованих атомах (X, Y=N, O, ...). Тоді, з точністю до сталого спільного множника та з урахуванням усіх корекцій інтенсивності  $L\beta_1-, L\beta_{2,15}-$  та  $L\beta_3-$  ліній разом з сателітами (у числах фотонів) визначаються за формулами:

$$I(L\beta_{3+S}) = \sigma_1 \frac{\Gamma(\beta_3)}{\Gamma(L_1)}, \quad (1)$$

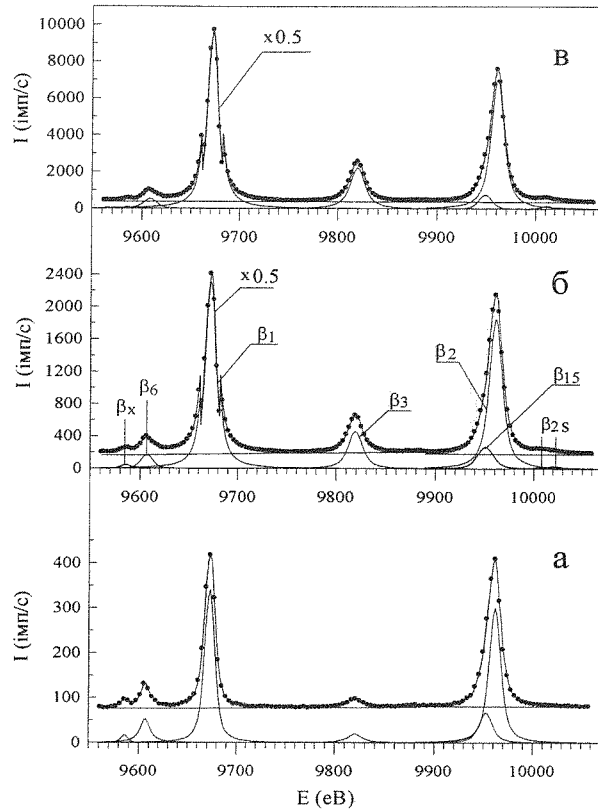


Рис. 1.  $L\beta$ - спектри  $W$  при значеннях прискорюючих напруг  $U=13\text{kV}$  (а),  $U=20\text{kV}$  (б),  $U=35\text{kV}$  (в)

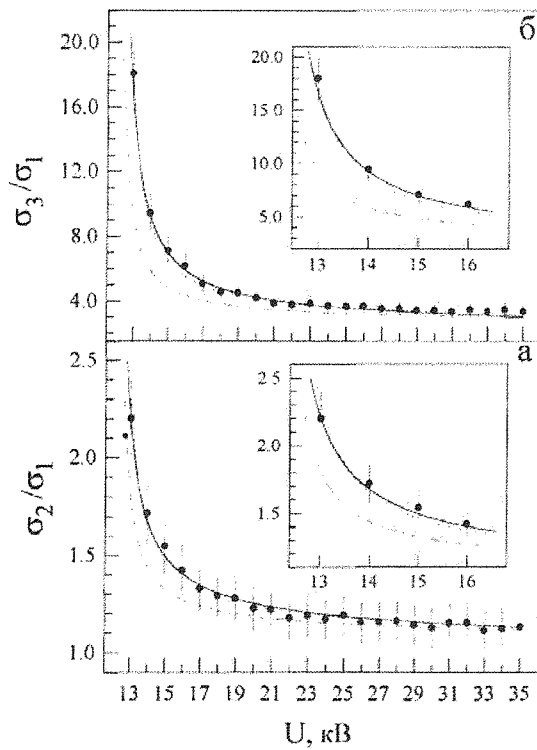


Рис. 2. Відношення інтегральних перерізів  $\sigma_2/\sigma_1$  (а) та  $\sigma_3/\sigma_1$  (б) атомів  $W$  при різних прискорюючих напругах

$$I(L\beta_{1+S}) = (\sigma_2 + \sigma_1 f_{12}) \frac{\Gamma(\beta_1)}{\Gamma(L_2)}, \quad (2)$$

$$I(L\beta_{2,15+S}) = [\sigma_3 + \sigma_2 f_{23} + \sigma_1 (f_{13} + f_{12} f_{23})] \frac{\Gamma(\beta_{2,15})}{\Gamma(L_3)}, \quad (3)$$

де  $\Gamma(\beta_3)$ ,  $\Gamma(\beta_1)$ ,  $\Gamma(\beta_{2,15})$  — парціальні ширини  $L_1$ -,  $L_2$ - та  $L_3$ - рівнів, що відповідають радіаційним переходам  $L_1-M_3$  ( $L\beta_3$ ),  $L_2-M_4$  ( $L\beta_1$ ) та  $L_3-N_{3,4}$  ( $L\beta_{2,15}$ );

$f_{12}$  — вихід переходів Костера–Кроніґа (КК) типу  $L_1-L_2X$ ;

$f_{13}$  — вихід КК- переходів типу  $L_1-L_3M_5$  та  $L_1-L_3X$ ;

$f_{23}$  — вихід КК- переходів типу  $L_2-L_3X$ ;

$\Gamma(L_1)$ ,  $\Gamma(L_2)$ ,  $\Gamma(L_3)$  — повні ширини  $L_1$ -,  $L_2$ - та  $L_3$ - рівнів, відповідно.

У формулах (1)–(3) враховано, що початкова вакансія у  $L_1$ - підоболонці створюється лише за рахунок прямої іонізації електронним ударом, у  $L_2$ - підоболонці — як за рахунок прямої іонізації, так і автоіонізації через КК- переходи  $L_1-L_2X$  (в останньому випадку створені двовакансійні стани є початковими для  $L_2X$ - сателітів, що накладаються на діаграмну  $L\beta_1$ - лінію). Генерація вакансій у  $L_3$ - підоболонці шляхом прямої іонізації доповнюється КК- переходами  $L_1-L_3M_5$  та КК- каскадом  $L_1-L_2X$ ,  $L_2X-L_3XY$ . Як і у випадку  $L\beta_1$ - лінії,  $L_3M_5$ -,  $L_2X$ - та  $L_3XY$ - стани є початковими для відповідних сателітів, які рееструються разом з  $L\beta_{2,15}$ - лініями. Розв'язуючи систему рівнянь(1)–(3), отримуємо:

$$\frac{\sigma_2}{\sigma_1} = h \frac{\Gamma(L_2)\Gamma(\beta_3)}{\Gamma(L_1)\Gamma(\beta_1)} - f_{12}, \quad (4)$$

$$\frac{\sigma_3}{\sigma_1} = g \frac{\Gamma(L_3)\Gamma(\beta_3)}{\Gamma(L_1)\Gamma(\beta_{2,15})} - \frac{\sigma_2}{\sigma_1} f_{23} - f_{13} - f_{12} f_{23}, \quad (5)$$

де

$$h = \frac{I(L\beta_{1+S})}{I(L\beta_{3+S})}, \quad g = \frac{I(L\beta_{2,15+S})}{I(L\beta_{3+S})}. \quad (6)$$

У розрахунках за формулами (4-5) використовувалися перевірені значення радіаційних ширин ліній  $\Gamma(\beta_1)$ , ширин  $L_2$ -,  $L_3$ - рівнів  $\Gamma(L_2)$ ,  $\Gamma(L_3)$  та виходів  $f_{ij}$ . Також при розрахунках було використано уточнені нами значення ширини  $L_1$ - рівня та виходів  $f_{12}$ ,  $f_{13}$  для атомів W з урахуванням існування КК- переходів типу  $L_1-L_3M_5$  [11]. Враховуючи точність визначення цих величин, відносна похибка розрахунку  $\sigma_2/\sigma_1$  за формулою (4) складає  $(8 \div 10)\%$ , а розрахунку  $\sigma_3/\sigma_1$  за формулою (5) —  $(13 \div 15)\%$ .

Важливо відзначити, що при інтерпретації результатів, отриманих за умов електронного бомбардування товстих мішеней, необхідно враховувати зменшення енергії пучка електронів при заглибленні у речовину зразка. Один із можливих розв'язків цієї задачі полягає у використанні ефективної енергії електронів  $E_{\text{eff}}$ , яка була б моноенергетичним еквівалентом іонізуючої дії електронів пучка у процесі зменшення їх енергії від  $E_0=eU$  ( $e$ — заряд електрона) до  $E_1$ . Такий підхід, перевірений експериментально [12], було використано і в даній роботі: для кожної з  $L_1$ - підоболонки розраховувалися ефективні енергії  $E_{\text{eff}}$ .

Штриховою лінією на рис. 2 вказано результат розрахунку  $\sigma_2/\sigma_1$  і  $\sigma_3/\sigma_1$  у моделі класичних бінарних співударів КБС [9], а штрих-пунктирною — за напівемпіричною формулою [8]. Як видно з рис. 2, в області прискорюючих напруг  $U \approx 17$  кВ ( $i \approx 1.4$ ) розбіжності між результатами розрахунків та експеримен-

тальними значеннями  $\sigma_2/\sigma_1$  і  $\sigma_3/\sigma_1$  (точки на рис. 2) не виходять за межі похибок експерименту. Однак, при наближенні до порогів іонізації  $L_1$ - підоболонки відмінності між даними обчислень за моделлю КБС та напівемпіричною формулою істотно зростають, досягаючи 30% для  $\sigma_2/\sigma_1$  та 70% для  $\sigma_3/\sigma_1$  при  $U=13$  кВ. Несподіваним є те, що при зменшенні прискорюючої напруги величини  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$ , розраховані за моделлю КБС, значно краще співвідносяться з даними експерименту, ніж результати розрахунків за напівемпіричною формулою. Вважається, що застосування моделі КБС є виправданим при великих перевищеннях. Отже, питання про границі застосування моделі КБС не є остаточно з'ясованим. Тому отримане у даній роботі добре узгодження розрахованих та експериментально визначених відношень  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$  для  $L_1$ - підоболонки  $W$  свідчить про необхідність додаткового розгляду можливостей застосування моделі КБС у біляпороговій області. Що стосується напівемпіричної формули, то узгодження з експериментом є непоганим, особливо у біляпороговій області.

**Висновки та перспективи подальших досліджень.** На підставі експериментально отриманих значень відносної інтенсивності  $L\beta_1$ -,  $L\beta_{2,15}$ - та  $L\beta_3$ - ліній рентгенівського емісійного  $L\beta$ - спектру  $W$  визначено відношення ІПІ  $L_1$ - підоболонки  $\sigma_2/\sigma_1$  та  $\sigma_3/\sigma_1$  в області перевищень  $1 < \varepsilon < 3$ . З'ясовано, що залежність відношень  $\sigma_2/\sigma_1$  і  $\sigma_3/\sigma_1$  від енергії бомбардуючих електронів добре описується у наближенні класичних бінарних співударів [9] та за допомогою напівемпіричної формули [8], яка може бути рекомендована до застосування при обчисленнях ІПІ  $L_1$ - підоболонки атомів важких елементів  $Z > 70$ .

### Література

1. Takeshi K. Single-differential and integral cross sections for electron-impact ionization for the damage of carbon clusters irradiated with x-ray free-electron lasers // *Phys. Rev. A.* — 2010. — V. 81. — 023201(7).
2. Mozejko P. Calculations of electron impact ionizations cross section for simple biomolecules: Formic and acetic acids // *European Physics Journal.* — 2007. — V. 144. — P. 233–237.
3. Yang N., Jiang J., Chen-Zhang D. Differential and integral cross section for electron impact excitation of lithium // *Chinese Physics Letters.* — 2010. — V. 27, № 11. — P. 3401–3409.
4. Bartlett P.L., Stelbovics A.T. Electron-impact ionization cross section for elements  $Z=1$  to  $Z=54$  // *Atom. Data and Nucl. Data Tables.* — 2004. — V. 86, №2. — P. 235–265.
5. Iriarte D.J., Di Rocco H.O. Electron impact ionization cross-sections for atoms and ions: a semiempirical study of trends and regularities // *II. Nuovo Cimento.* — 1998. — V. 20D, № 6. — P. 731–748.
6. Bernshtam V.A., Ralchenko Yu.V., Maron Y. Empirical formula for cross section of direct electron-impact ionization of ions // *J. Phys. B.* — 2000. — V. 33, № 22. — P. 5025–5032.
7. Szluinska M., Van Reeth P., Larichia G. Empirical scaling of positron- and electron-impact ionization cross section // *J. Phys. B.* — 2002. — V. 35, № 14. — P. 4059–4067.
8. Borovoy M.O., Ischenko R.M., Shyyanovkyi V.I. Integral cross sections of ionization of  $L$ -subshells of tungsten atoms under electron bombardment near energetic threshold // *Ukrainian journal of physics.* — 2004. — V. 49, №1. — P. 21–25.
9. Gryzinski M. Classical theory of atomic collisions. I. Theory of inelastic collisions // *Phys. Rev.* — 1965. — V. 138, № 2A. — P. 336–358.
10. Каразия Р. Введение в теорию рентгеновских и электронных спектров свободных атомов. — Вильнюс: Мокслас, 1987. — 276 с.
11. Боровой Н.А., Иценко Р.Н., Шияновский В.И. Парциальная ширина  $L_1$ -уровня, связанная с переходом Костера-Кронига  $L_1-L_3M_3$  в атомах элементов W, Re, Os, Ir, Pt // *Оптика и спектроскопия.* — 2003. — Т. 95, № 4. — С. 566–570.
12. Шияновский В.И. Встряска и прямые соударения в атомах при фотоионизации,  $\beta$ -распаде и ионизации электронным ударом // *Журнал экспериментальной и теоретической физики.* — 1989. — Т. 95, № 2. — С. 467–474.