

02; 12

МНОГОКРАТНАЯ ИОНИЗАЦИЯ ЭЛЕКТРОНАМИ АТОМОВ САМАРИЯ, ЕВРОПИЯ, ТУЛИЯ И ИТТЕРБИЯ

Л. Л. Шимон, П. Н. Волович, М. М. Чирибан

На экспериментальной установке, созданной на базе времяпролетного масс-спектрометра МСХ-5 и временного анализатора АИ-4096, впервые измерены энергетические зависимости эффективных сечений одно-, дву- и трехкратной ионизации атомов самария, европия, тулия и иттербия при энергиях налетающих электронов от порогов до 250 эВ. Функции нормированы по полным сечениям ионизации, измеренным нами ранее. На функциях наблюдается структура, обусловленная процессами ионизации внутренних $4f$ - и $5p$ -оболочек, а также безызлучательным распадом автоионизационных состояний.

Ионизация атомов электронным ударом играет важную роль среди многочисленных элементарных процессов, во многом определяющих свойств плазмы. Данные исследований процессов ионизации представляют значительный интерес с точки зрения теории строения атома, дают ценную информацию о свойствах электронных оболочек.

Исследования сечений ионизации металлов в отличие от газовых объектов характеризуются целым рядом принципиальных трудностей, которые резко возрастают по мере перехода к элементам с высокими температурами испарения. В связи с этим среди атомов металлов наиболее полно изучены парциальные сечения ионизации и их энергетические зависимости (функции ионизации) элементов первой и второй групп периодической системы — щелочных и щелочноземельных металлов. По мере перехода к металлам с более высокими температурами испарения процессы ионизации атомов электронным ударом исследованы все в меньшей мере.

Семейство редкоземельных металлов привлекает внимание исследователей. Особые свойства этих элементов обусловили их применение в качестве активных лазерных сред, материалов для микроэлектроники и полупроводниковой электроники, деталей ядерных реакторов. С другой стороны, исследования ионизации атомов лантаноидов представляют интерес в связи с наличием достраивающейся внутренней электронной $4f^k$ -подоболочки ($k=1-14$). Ранее в [1] с использованием техники пересекающихся электронного и модулированного атомного пучков нами были измерены энергетические зависимости полных сечений ионизации атомов самария, европия, тулия и иттербия. В настоящей работе впервые исследованы парциальные сечения этих элементов.

Экспериментальная установка и методика измерений

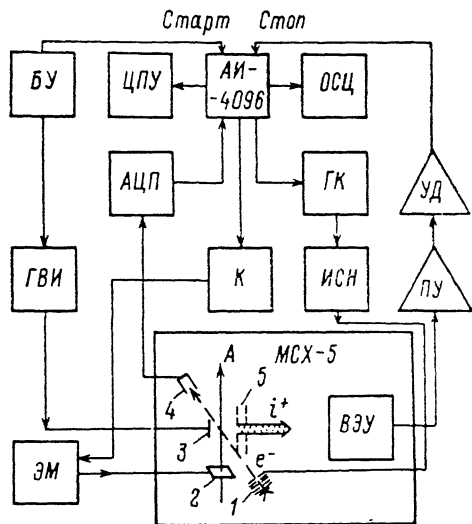
Экспериментальная установка создана на базе отечественного времяпролетного масс-спектрометра МСХ-5. В системе регистрации применен многомерный анализатор импульсов АИ-4096. Блок-схема установки приведена на рис. 1.

Моноэнергетический электронный пучок формируется пятиэлектродной электронной пушкой с оксидным катодом и детектируется приемником электронов (два коаксиальных цилиндра Фарадея). Пучок нейтральных атомов исследу-

дугевого металла образуется в результате эффузии паров через горячий канал атомного источника, коллимируется холодными щелями и под прямым углом пересекается с электронным пучком. Ионы, возникающие в результате взаимодействия пучков, выталкиваются коротким импульсом генератора выталкивающих импульсов (ГВИ) в ускоряющий промежуток, после чего попадают в пространство дрейфа масс-спектрометра. В пространстве дрейфа, где влияние внешних полей пренебрежимо мало при используемых энергиях, происходит разделение ионов с равными значениями отношениями заряда к массе в пакеты. Ионы детектируются вторичным электронным умножителем ВЭУ-1А, импульсы тока которого после усиления, ограничения и формирования поступают на вход «Стоп» блока временного преобразования БВП-6А анализатора АИ-4096, где преобразуются в цифровой код номера канала. Разбиение каналов анализатора на группы, в каждой из которых осуществляется быстрый временной анализ ионных пакетов, позволяет измерять функции ионизации при 128 фиксированных значениях энергии электронов. Экспозиция в группах задается таймерным регистром анализатора по набору импульсов аналого-цифрового преобразователя (АЦП), частота которых пропорциональна току электронного

Рис. 1. Блок-схема установки.

1 — электронная пушка, 2 — прерыватель, 3 — выталкивающий электрод, 4 — приемник электронов, 5 — ускоряющий промежуток, А — атомный пучок, e^- — электронный пучок, i^+ — ионный пучок, ПУ — предварительный усилитель, УД — усилитель-дискриминатор, ЦПУ — цифрочитающее устройство, ОСЦ — осциллоскоп, АЦП — аналого-цифровой преобразователь, ГК — генератор кода, К — ключ, ИСН — источник ступенчатого напряжения, БУ — блок управления масс-спектрометра, ГВИ — генератор выталкивающих импульсов, ЭМ — электро-



пучка. Полезный сигнал при этом делится на величину электронного тока. Развертка электронов по энергии осуществляется источником ступенчатого напряжения (ИСН) типа Б5-46—Б5-50. Работой источника управляет генератор кода (ГК), переключение которого происходит синхронно с переключением групп каналов анализатора импульсом переполнения таймерного регистра.

Для учета фона, возникающего в результате ионизации остаточных газов, атомный пучок модулируется с помощью прерывателя, приводимого в движение электромагнитом (ЭМ) через сильфон вакуумной камеры. Электромагнит работает синхронно с переключением анализатора из режима «Сложение» в режим «Вычитание», что обеспечивает автоматическое вычитание фона. Многократное сканирование энергетического диапазона в процессе измерений сводит к минимуму ошибки, связанные с нестабильностью условий эксперимента. Измерения проводились в условиях однокабинетной столкновений электронов с атомами: концентрация атомов исследуемого металла в области столкновений $N < 2 \cdot 10^{11}$ атом/см³, плотность электронного тока $j = 5 \cdot 10^{-4}$ А/см², разброс электронов по энергиям на полувысоте энергетического распределения ≤ 0.6 эВ во всем исследуемом диапазоне, давление остаточных газов в камере столкновений $\leq 5 \cdot 10^{-7}$ Тор.

Полученные в результате многократного прохождения энергетического диапазона функции одно-, дву- и трехкратной ионизации атомов фотографировались с экрана осциллоскопа либо выводились на цифрочитающее устройство.

Результаты и их обсуждение

С целью проверки методики были проведены контрольные эксперименты по ионизации атомов бария. Полученные функции одно- и двукратной ионизации бария представлены на рис. 2. Там же приведены и результаты других авторов.

Наилучшее совпадение измеренных нами функций в области максимумов наблюдается с данными работ [2, 3] для Ba^+ и [4] для Ba^{2+} . Для оперативной проверки регистрирующего тракта в отсутствие атомного пучка измерялась функция однократной ионизации Ar , вид которой хорошо известен. Подобная методика проверки аппаратуры применялась также в работе [5]. Измеренная функция Ar^+ хорошо согласуется с данными этой работы.

На рис. 3 приведены полученные нами функции одно-, двух- и трехкратной ионизации атомов Sm , Eu , Tm и Yb при энергиях налетающих электронов от порогов до 250 эВ. Функции нормированы различным методом по полным сечениям ионизации (Q_n), измеренным нами в работе [1] на отдельной установке с точностью $\pm 20\%$. Как видно, общий вид функций ионизации (ФИ) у различных исследованных элементов подобен. Этот результат не является неожиданным ввиду того, что внешняя $6s^2$ -оболочка неизменна для всех РЗЭ, а, как показывает эксперимент, $6s$ -ионизация доминирует в исследованных процессах.

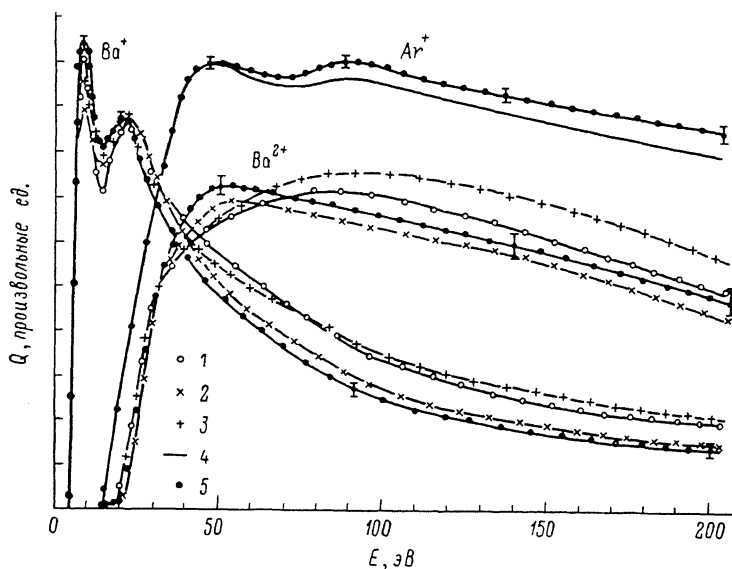


Рис. 2. Функции ионизации атомов бария и аргона.

1 — [2], 2 — [4], 3 — [2], 4 — [6], 5 — настоящая работа. Функции нормированы при энергиях 22 (Ba^+), 30 (Ba^{2+}), 45 эВ (Ar^+).

Преобладающий вклад в полные сечения вносит процесс однократной ионизации, однако эффективность дву- и трехкратной ионизации также относительно высока. Функция однократной ионизации характеризуется быстрым ростом от порогов до максимумов с последующим монотонным убыванием до ~ 0.25 максимального значения при энергиях ~ 250 эВ. Начальные участки измеренных кривых представлены на рис. 4. Как видно, сечения линейно нарастают от порогов, за исключением узких припороговых областей, где они подчиняются степенному закону $Q \sim E^{\gamma}$. Такое поведение сечений характерно для процесса отрыва внешних валентных $6s$ -электронов (прямой ионизации) [6]. Протяженность нелинейных и линейных участков составляет соответственно 1.2 и 3.2 эВ для Sm , 0.9 и 3.4 эВ для Eu , 0.6 и 2.8 эВ для Tm , 0.3 и 2 эВ для Yb . Эти результаты не противоречат выводам работы [6], согласно которым область нелинейности функции ионизации, рассчитанной по формуле Ванье [7] ($Q \sim E^{1.127}$), не превышает десятых долей электрон-вольт для элементов с малыми потенциалами ионизации.

На восходящих участках функций заметны изломы, происхождение которых мы относим к включению ионизации $4f$ -подоболочки, что следует из сопоставления с пороговыми значениями этого процесса. У Tm и Yb эти особенности выражены наиболее четко.

Известно, что редкоземельные элементы характеризуются богатыми спектрами автоионизационных состояний (АИС). В работе [8] в спектрах испущен-

ных электронов Eu был обнаружен целый ряд линий атомных АИС, имеющих практически общий порог ~ 19 эВ, интенсивности которых достигают максимумов при энергиях $\sim 20-20.5$ эВ, т. е. носят резонансный характер. Такое

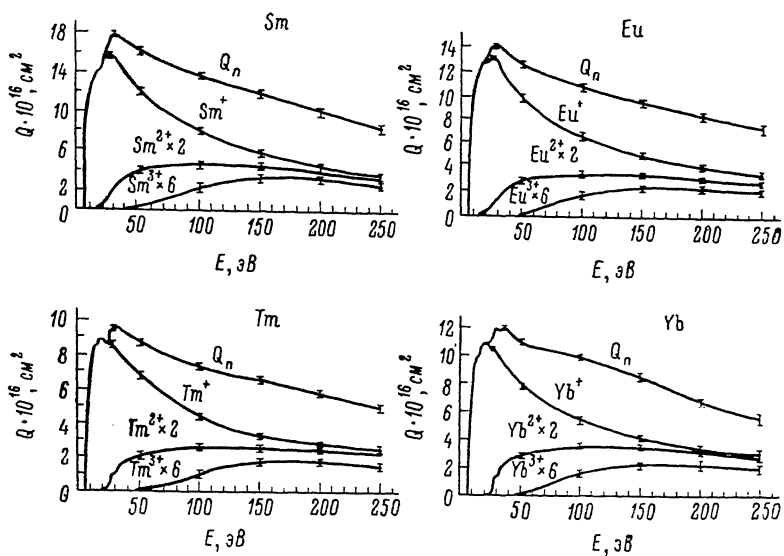


Рис. 3. Полные и парциальные сечения ионизации атомов Sm, Eu, Tm и Yb.

поведение интенсивности линий, характерное для распада оптически запрещенных АИС, по мнению авторов, связано с образованием короткоживущего состояния отрицательного иона вблизи указанных энергий, последующий распад

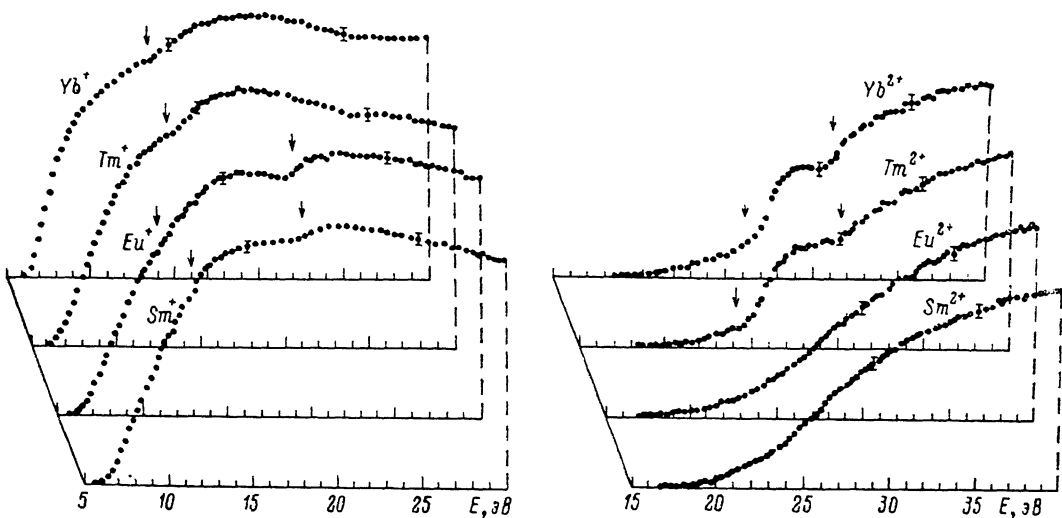
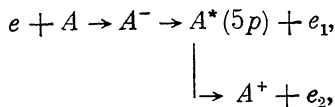


Рис. 4. Начальные участки функций одно- и двукратной ионизации атомов Sm, Eu, Tm и Yb (в произвольных единицах).

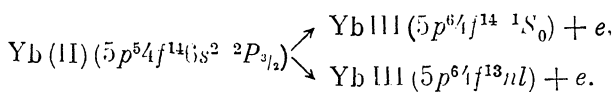
которого приводит к дополнительному заселению атомных АИС $5p^6$ -оболочки



где e_1 и e_2 — рассеянный и испущенный атомом электроны.

Действительно, на функции однократной ионизации Eu^+ при энергии ~ 19 эВ наблюдается четкий минимум, а уже при энергиях ~ 21 — 22 эВ сечение достигает максимального значения. Аналогичная особенность наблюдается и на функции однократной ионизации Sm при $E \sim 18$ эВ.

В процессе двукратной ионизации заметно существенное различие в пороговом поведении функций Sm^{2+} , Eu^{2+} , с одной стороны, и Tm^{2+} , Yb^{2+} — с другой. В то время как начальные участки функций Eu^{2+} и Sm^{2+} следуют квадратичному закону $Q \sim E^2$, что согласуется с правилом, сформулированным Ванье [9], сечения Yb^{2+} и Tm^{2+} нарастают от порогов ступенчато, с резкими изломами (рис. 4). Такое поведение сечений характерно при ионизации внутренних оболочек с последующим распадом возбужденных АИС. Аналогичное поведение функций двукратной ионизации у порога наблюдается у Ba (отличающегося от РЗЭ отсутствием $4f$ -оболочки) и других щелочноземельных элементов [2]. Согласно [2], причиной излома функции Ba^{2+} следует считать ионизацию $5p^6$ -оболочки с последующим оже-распадом ионных АИС. С $5p^6$ -ионизацией связаны, как показывает анализ, также особенности функции Yb^{2+} . В спектрах испущенных электронов Yb [10] наиболее интенсивная линия с энергией 12.91 эВ, а также ряд других обусловлены оже-распадом автоионизационного состояния однозарядного иона Yb II ($5p^5d^2$) с энергией возбуждения $E = 31.35$ эВ в основное и низколежащие возбужденные состояния двухзарядного иона Yb III .



Этому процессу, очевидно, соответствует излом на функции Yb^{2+} при энергии ~ 32 эВ. Резкий скачок сечения при энергии ~ 26 эВ может быть обусловлен распадом группы АИС Yb II ($5p^5 5d^2$) и Yb II ($5p^5 5d 6s$) в различные конечные состояния двухзарядного иона Yb III [11]. Отсутствие сведений об электронных спектрах Tm не позволяет таким же образом идентифицировать структуру функции Tm^{2+} , однако близость строения электронных конфигураций Tm ($5p^6 4f^{13} 6s^2$) и Yb ($5p^6 4f^{14} 6s^2$) дает возможность предположить аналогичную причину ее возникновения.

Таким образом, у самария и европия наряду с процессом $6s$ - и в меньшей мере $4f$ -ионизации эффективно проходит процесс возбуждения атомных АИС $5p^6$ -оболочки, безызлучательный распад которых приводит к появлению структуры на функциях однократной ионизации. В свою очередь у Tm и Yb ионизация $5p^6$ -оболочки с возбуждением и последующим оже-распадом ионных АИС является причиной особенностей припорогового поведения энергетических зависимостей сечений двукратной ионизации.

Список литературы

- [1] Али М. М., Волович П. Н. // Процессы элементарных взаимодействий в атомах. Ужгород, 1985. С. 199—206.
- [2] Головач Д. Г., Раховский В. И., Шустряков В. М. // ПТЭ. 1986. № 6. С. 141—144.
- [3] Okudaira S. // J. Phys. Soc. Jap. 1970. Vol. 29. N 2. P. 409—415.
- [4] Dettmann J.-M., Karstensen F. // J. Phys. B. 1982. Vol. 15. P. 287—300.
- [5] Okudaira S., Kaneko Y., Kanomata J. // J. Phys. Soc. Jap. 1970. Vol. 28. N 6. P. 1536—1541.
- [6] Петеркоп Р. К., Цукерман П. Б. // ЖЭТФ. 1970. Т. 58. Вып. 2. С. 699—705.
- [7] Wannier G. H. // Phys. Rev. 1953. Vol. 90. N 5. P. 817—825.
- [8] Казаков С. М., Христофоров О. В. // ЖЭТФ. 1984. Т. 86. Вып. 3. С. 835—846.
- [9] Wannier G. H. // Phys. Rev. 1955. Vol. 100. N 4. P. 1180.
- [10] Алексашин И. С., Боровик А. А., Вакула В. В., Вольдман М. Л. // ЖТФ. 1980. Т. 50. Вып. 1. С. 218—220.
- [11] Казаков С. М., Христофоров О. В. // Элементарные процессы при атомных столкновениях. Чебоксары, 1984. С. 126—132.