

ATOMI BELSŐHÉJ-FOLYAMATOK VIZSGÁLATA KOINCIDENCIA ELEKTRONSPEKTROMETRIÁVAL – II. RÉSZ

Paripás Béla, Palásthy Béla
Miskolci Egyetem, Fizikai Tanszék

A *Fizikai Szemle* 2012. novemberi számában megjelent első részben az elméleti bevezetés és a mérőrendszer bemutatása olvasható.

Néhány kísérleti eredmény

PCI-mérések

A PCI rövidítés az ütközés utáni kölcsönhatás angol nevéből (post-collision interaction) képzett mozaikszó, a vizsgált Auger-folyamat (1) különböző lépései során keletkezett töltött részecskék Coulomb-kölcsönhatását jelenti. Ebben a folyamatban a PCI energiacsere jelent az első lépésben keletkezett ionizációs (e_{ij}^-) és szórt elektronok (e_{sc}^-), valamint a második lépésben keletkezett Auger-elektronok (e_{Auger}^-) között (1. ábra). Ez az energiacsere az Auger-csúcsok alakjának torzulására és maximumainak eltolódására vezet. Ez kísérletileg jól mérhető, és a PCI-t leíró félklasszikus modell keretében az úgynevezett aszimmetria-paraméter bevezetésével kvantitatív módon is vizsgálható [2].

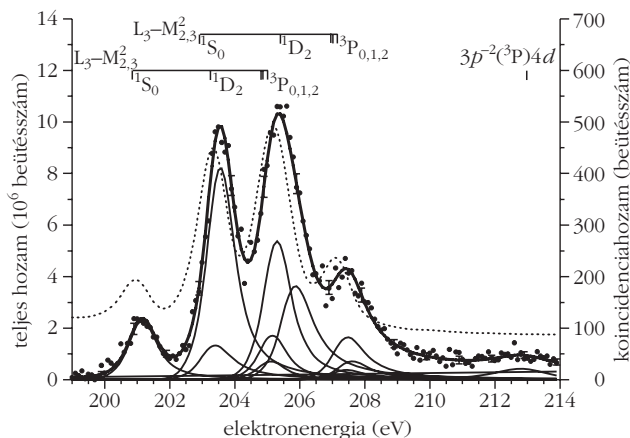
A PCI különösen erős a kis energiás ionizációs elektronokra, ezeket „utoléri” a később keletkezett Auger-elektron. Ez akkor következik be, ha az atomnak átadott energia alig haladja meg az ionizációs energiát (5. ábra). A modell szerint ilyenkor az aszimmetria-paraméter lényegében csak az ionizációs elektron sebességének nagyságától függ. Azaz végeredményben a PCI-t a megmért elektronenergiák szinte teljesen meghatározzák, a jórészt megmértlenül maradt sebességi irá-

nyok alig befolyásolják. Az a) „ablakban” végzett mérés során tehát a PCI lényegében irányfüggetlen, mértéke kiszámítható, a kísérlettel jól összevethető. Ez az összevetés azért is izgalmas, mert a nagyon lassú elektronok félklasszikus leírása – a nagy hullámhosszuk miatt – már ugyancsak kérdőjeles.

Az argon $L_{2,3}$ – $M_{2,3}$ Auger-elektron spektrumát 500 eV nominális lövedékelektron-energiánál vettük fel [3]. Ennél a primer energiánál az L_3 és L_2 belső héjak ionizációs potenciálja fölötti többletenergia 251,4 eV, illetve 249,2 eV érték. Ez a többletenergia a szórt lövedék és az ionizációs elektron között oszlik szét. Az Auger-elektronok spektrumát a 248 eV energiájú szórt elektronokkal koincidenzában vettük fel, tehát az L_3 és L_2 belső héjak ionizációja során kibocsátott elektronoknak névlegesen csak 3,4 eV, illetve 1,2 eV kinetikus energia marad. Ezek jelentősen különböző értékek, a koincidenzá-spektrumban a PCI a két alhéjra tehát jelentősen eltér. A 6. ábrán az összegzett teljes (nem koincidenzá) és a koincidenzában mért elektronspektrumok láthatók, amelyeknél a körülbelül 20%-os véletlen koincidenzá már levontuk. A spektrum körülbelül 10^9 nagyságrendű beütést tartalmaz, amelyet 15-25 nap alatt vettünk fel.

Az illesztés során a kvadratikus háttér levonása után a PCI torzított csúcsalakat konvoláltuk a kísérleti spektrométer átviteli függvényvel. Először mindig a teljes energiaspektrumot illesztettük. A modellspektrumban a 10 diagram Auger-vonal intenzitásai és energiái illesztendő paraméterek voltak, kivéve a tripleteket, ahol az intenzitásarányokat és az energiakülönbségeket az irodalomból [4] vettük. A teljes spektrum 10 csúcsának közös aszimmetria-paramétere is egy illesztendő paraméter. A teljes spektrumok igen

A kutatás a TÁMOP-4.2.1.B-10/2/KONV-2010-0001 jelű projekt részeként, az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.



6. ábra. A teljes (nem-koincidencia) elektronenergia-spektrum [3] (---) és a 248 eV-os elektronokkal koincidenciában mért spektrum (•) 500 eV primer energiánál. (Néhány kísérleti pont hibáját, az illesztett modellspektrumok (vastag vonal) és a spektrumkomponensek (vékony vonal), a csúcsok jelölését és energiáját szintén feltüntettük).

jó statisztikája lehetővé tette a közel 20 független paraméter egyidejű illesztését. A későbbiekben a kísérleti érték alatt az illesztés eredményét értjük. A koincidencia-spektrumok statisztikája azonban nem volt túl jó, ezért az illesztendő paraméterek számát minimalizálnunk kellett. Csak a két alhéj intenzitásait és aszimmetria-paramétereit, a spektrométer átviteli függvény szélességét és a háttér paramétereit illesztettük, a többi paraméter értékét rögzítettük a teljes spektrum illesztésénél kapott értéken.

A koincidencia-spektrum nagyenergiás végén (212–214 eV) nem belső héj eredetű kis csúcs(ok) figyelhető(k) meg. Az átadott energia és a kis csúcs(ok) energiájának különbsége körülbelül 38–40 eV, ami megfelelhet az $Ar^{*}3p^{-2}(^1D$ vagy $^3P)3d$ vagy $4d$ külső héj gerjesztett szatellitállapotoknak. Az ábrán a 212,7 eV-nál látható csúcs minden bizonnyal az $Ar^{*}3p^{-2}(^3P)4d$ 2D és 2P csoportnak felel meg.

A két alhéjra számított átlagos aszimmetriaparaméter-érték ennél az energiakombinációnál (figyelembe véve a kibocsátott elektronok (5) szórású Gauss-eloszlását is) $-2,6$, illetve $-5,4$. A kísérleti spektrumra legjobban illeszkedő modellspektrum aszimmetria-paraméterre (amit kísérleti aszimmetria-paraméternek tekinthetünk) a két alhéjra $-2,0 (\pm 0,1)$, illetve $-4,12 (\pm 0,4)$. Az egyezés elég jó, különösen ha azt is figyelembe vesszük, hogy az illesztett spektrum aszimmetria-paraméterének nagysága szükségszerűen az átlagérték alatt van [3]. Ezen eredményünk szerint a néhány eV-os elektronok PCI-kölcsönhatásának félklasszikus leírása még nem mond ellent a kísérleti adatoknak. A még kisebb energiájúaké ($E_{ej} < 1$ eV) azonban már igen, ahogy ezt egy későbbi kísérletünkben [5] igazoltuk.

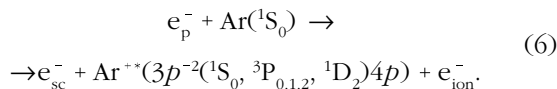
Elektronüttközéses rezonáns Auger-mérések

Az elektronüttközéses rezonáns Auger-folyamat az elektronnal gerjesztett belső héj vakanciás atomi rezonancia Auger-szerű elbomlását jelenti ((2), illetve 1. ábra alsó része). Régebbi, nem-koincidencia méréseink-

ben az argon belső héj ionizációjához tartozó igen kis intenzitású szatellitvonalait egy speciális kiértékelési folyamattal igyekeztünk a diagramvonalakról leválasztani [6]. Ez részben sikerült is, megfigyeltük – többek között – a $2p^{-1}(^2P_{3/2})4s$ és $4p$ gerjesztéseket követő legvalószínűbb (azaz 1D) átmeneteket az összes vizsgált primer energián. Szelektív módszerekkel – ilyen az (e,2e) módszer is – a kis intenzitású szatellitvonalak kiemelhetők a spektrumból, lényegében felnagyíthatók. Ezt a folyamatot azonban – a nyilvánvaló mérés-technikai nehézségek miatt – ezzel a módszerrel se nagyon szeretik vizsgálni a kísérleti fizikusok. Az elektronüttközéses adatok hiánya azért is szembeötlő, mert a megfelelő fotongerjesztéses folyamatoknak (például $2p^{-1}(^2P_{3/2})4s$) könyvtárnyi az irodalma. A dipól tiltott gerjesztések ráadásul fotonnal nem is valósíthatók meg, így ezek rezonáns Auger-spektrumaira nincs is mérési adat (a miénket kivéve). Jelen cikkben ez utóbbi kategóriából mutatjuk be az argon $2p^{-1}(^2P_{3/2})4p$ elektronüttközéses rezonáns Auger-spektrumát [7].

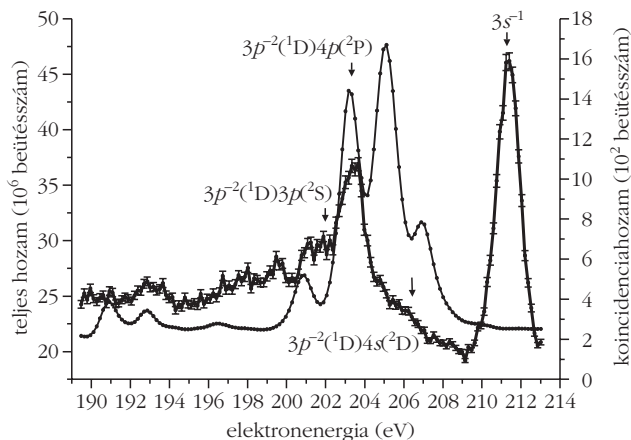
Méréseinket az 5. ábra b) átadott energia „ablakában” végeztük, amelyben $E_{tr} = 245,7$ eV, ami a 344,9 eV primer energia és a 99,2 eV koincidencia-feltétel különbségeként adódik. (Megjegyezzük, hogy a (b) ablak közepe egy kicsit alatta van a $2p^{-1}(^2P_{3/2})4p$ gerjesztési energiának, hogy a $2p^{-1}(^2P_{1/2})4s$ gerjesztést mindenképpen elkerüljük.) Mielőtt azonban a kapott koincidencia-spektrumot bemutatnánk, szólnunk kell ezen mérés legnagyobb nehézségéről, a koincidencia-spektrum direkt ionizációs háttéréről.

A (2) képlettel leírt rezonáns Auger-folyamat végállapotai egyetlen lépésben, direkt módon is létre jöhetnek, ezt semmiféle fizikai törvény nem tiltja:



Ez a folyamat egy egyszeres direkt ionizáció, így a második elektront most rezonanciós elektronnak nevezük. Az egyszeres ionizáció nagy valószínűségű folyamat (még ilyen különleges ion esetén is), így ezzel mindenképpen számolnunk kell. Lényeges különbséget jelenthetne az a tény, hogy most a végállapot kontinuumállapot folytonos elektronenergia-spektrumokkal (mert a végállapotbeli három részecske a többlet energián végtelen sokféleképpen osztható). Koincidencia-mérésben azonban rögzítjük az egyik elektron energiáját, ami – az energia megmaradása és az ion kis mozgási energiája miatt – vonalassá teszi a másik elektron spektrumát is.

A másik lényeges különbség az, hogy a direkt folyamat valószínűségének energiafüggése sokkal lassúbb, mint a rezonancia-szerű kétlépéses folyamaté. Különösen igaz ez a mi mérési körülményeink között, amikor a primer energia egy nagyságrenddel meghaladja az ionállapotét. Az 5. ábrán szereplő c) ablakban mérve tehát ugyanazt a direkt spektrumot kell kapnunk, mint a néhány eV távolságra lévő b) ablakban. A mért spektrumok eltérései kizárólag az indirekt folyamattól származhatnak. Másképpen fogal-



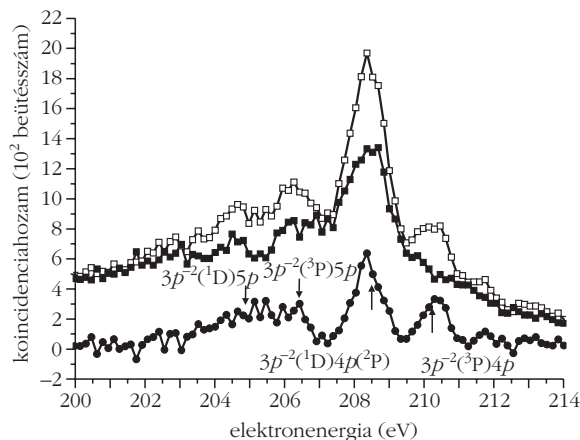
7. ábra. A teljes (vékony vonal) és az (e,2e) koincidencia spektrum (vastag vonal hibajellekkel) 99,2 eV koincidencia-feltétel mellett 340,0 eV primer energián (c) ablak (véletlen koincidenciák nélkül).

mazva a c) ablakban mért spektrum a b) ablakban mért rezonáns Auger-spektrum direkt ionizációs háttérét jelenti, ami így levonható. Itt meg kell jegyeznünk egyrészt azt, hogy a háttér levonása általános gyakorlat, a direkt ionizációs háttérrel egyszerű (nem koincidencia) Auger-spektrum mérésekben is le szokás vonni, ott azonban a háttér folytonos (általában egyenessel közelíthető). Másrészt azt, hogy ez nem mindig tehető meg, mert a direkt és indirekt folyamatoktól származó elektronhozamok nem föltétlenül additívak. Ugyanis az ugyanarra a végállapotra vezető folyamatok között kvantummechanikai interferencia is lehetséges. Ráadásul ez az interferencia akár jelentős is lehet, mert a direkt és indirekt folyamatoktól származó elektronhozamok közel egyenlők, ez esetleg megkérdőjelezheti a háttér levonásának fenti módszerét.

A direkt ionizációs háttér a 7. ábrán látható, legintenzívebb vonalait beazonosítottuk.

Az elektronütöközéssel gerjesztett $\text{Ar}^*(2p^{-1}(^2P_{3/2})4p)$ állapot lebomlása közben kibocsátott elektronok spektrumát (8. ábra) tehát úgy kaphatjuk meg, hogy a b) ablakban felvett koincidencia-spektrumból kivonjuk a c) ablakban mért (és a 7. ábrán bemutatott) direkt ionizációs háttérrel. A kivonás előtt a koincidencia-hozamokat természetesen normáltuk (itt most a 99,2 eV-os elektronok hozamára), a direkt ionizációs háttérrel pedig eltoltuk a primer energiák különbségével, azaz 4,9 eV-tal.

A spektrumban a korábbi nem-koincidenciaméréseinkben [6] talált vonal (az ábrán vastagon szedve) is jól látható, az a spektrum domináns vonala. A bejelölt 1D végállapotú vonalak fölött 1,6 eV-tal a megfelelő 3P vonalaknak is jelen kell lenniük. Az ábrákon ezek a csúcsok látszanak is 210,2 eV környékén.



8. ábra. Az (e,2e) koincidencia-spektrum (üres négyzet) 99,2 eV koincidencia-feltétel mellett 344,9 eV primer energián (b) ablak, a direkt ionizációs háttér (tele négyzet) és az $\text{Ar}^*(2p^{-1}(^2P_{3/2})4p)$ rezonáns Auger-spektrum (vastag vonal), mint az előző két spektrum különbsége.

Korábban utaltunk rá, hogy a rezonáns Auger-folyamatban a shake-up jelenséggel gyakran számolni kell. Az ábrán 204,4 eV és 206 eV energiánál megjelenő csúcsokról nagy bizonyossággal állíthatjuk, hogy a $2p \rightarrow 4p$ gerjesztést követő rezonáns Auger-bomlás ($3p^{-2}(^1D)5p$) és ($3p^{-2}(^3P)5p$) végállapotaihoz tartoznak. Számításaink azonban azt mutatják [8], hogy a shake-up jelenségnek kisebbnek kellene lennie. Ez fölveti annak lehetőségét is, hogy a 204–206,5 eV közötti magas beütésszám részben a direkt és indirekt folyamatok közötti kvantummechanikai interferencia következményei. E kérdés tisztázására jelenleg is folynak a méréseink.

Irodalom

- M. Yu. Kuchiev, S. A. Sheinermann: Resonant scattering with low-velocity outgoing charged particles. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 21 (1988) 2027.
- B. Paripás, B. Palásthy, G. Vitéz, Z. Berényi: Post-collision interaction measured by coincidence spectrometry in electron impact Auger process. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 41 (2008) 035201.
- Gy. Víkor, L. Tóth, S. Ricz, Á. Kövér, J. Végh, B. Sulik: Transition energies and relative intensities of the Ar $L_{2,3}$ -MM diagram Auger lines: a high-resolution study. *Journal of Electr. Spectr. Rel. Phen.* 83 (1997) 235.
- B. Paripás, B. Palásthy: Post-collision interaction after electron impact measured by (e,2e) coincidence technique. *Nucl. Instr. Meth. B* 267 (2009) 275.
- B. Paripás, Gy. Víkor, S. Ricz: Observation of Electron Impact Inner-Shell Excitation of Argon by means of Satellite Auger Spectra. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 30 (1997) 403.
- B. Paripás, B. Palásthy, M. Zitnik, K. Tőkési: Experimental (e,2e) study of resonant Auger states of Ar. *Nucl. Instr. Meth. B* 279 (2012) 66.
- B. Paripás, B. Palásthy, M. Stuehec, M. Zitnik: Resonant Auger decay of Ar $2p_{3/2}^{-1}4s$ and $2p_{3/2}^{-1}4p$ states excited by electron impact. *Phys. Rev. A* 82 (2010) 032508-1-10.