

02;12

Ионизация, перезарядка и возбуждение при столкновениях ионов натрия с аргоном

© Р.А. Ломсадзе,¹ М.Р. Гочиташвили,¹ Р.В. Квижинадзе,¹ Н.О. Мосулишвили,¹ С.В. Бобашев²¹Тбилисский государственный университет,
0128 Тбилиси, Грузия²Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: Lomsadze86@hotmail.com

(Поступило в Редакцию 25 апреля 2006 г.)

Измерены абсолютные значения сечений ионизаций, перезарядки и возбуждения при столкновении $\text{Na}^+ - \text{Ar}$ в области энергии ионов 0.5–10 keV. Исследования проведены модифицированным методом поперечного электрического поля и методом оптической спектроскопии. Механизмы реализации неупругих каналов качественно объяснены на основе схематической корреляционной диаграммы адиабатических квазимолекулярных термов системы сталкивающихся частиц. В случае процессов возбуждения выявлен квазимолекулярный характер взаимодействия. Установлены механизмы возбуждения партнеров столкновения. В возбуждении $4s$ -состояния атома аргона существенный вклад вносит каскадный переход с вышележащих $4p$ - и $3d$ -уровней. На функциях возбуждения атомарных линий аргона ArI (104.8; 106.7 nm) обнаружена осцилляционная структура.

Вид зависимости кривой сечения перезарядки от энергии столкновений объясняется двумя областями неадиабатичности. В области низких энергий (до $E = 2$ keV) перезарядка обусловлена захватом электрона в основное состояние в результате $\Sigma - \Sigma$ -переходов, а в области энергий $E > 3$ keV доминирующую роль в процессе перезарядки играют $\Sigma - \Pi$ -переходы, связанные с вращением межъядерной оси.

Для процесса ионизации выполнены оценки вклада ряда неупругих каналов. Установлено, что основной вклад в ионизацию связан с распадом автоионизационных состояний в изолированном атоме.

PACS: 52.20.Hv

Введение

При медленных ион-атомных столкновениях исследования процессов ионизации, перезарядки и возбуждения дают информацию о квазимолекулярном механизме взаимодействия сталкивающихся частиц. В частности, квазимолекулярные особенности процесса столкновения проявляются в наблюдении регулярных осцилляций в полных сечениях возбуждения, которые интерпретируются на основе модели фазовой интерференции квазимолекулярных состояний [1,2]. При этом данные об абсолютных величинах сечений неупругих процессов при столкновениях ионов Na^+ с атомами Ar представляют интерес для установления механизма неупругих переходов с участием наружных оболочек сталкивающихся частиц. Известно, что неупругие процессы при столкновении частиц с замкнутыми электронными оболочками приводят к рассеянию ионов на сравнительно большие углы и сопровождаются появлением электронов с энергией до нескольких десятков электронвольт. Это обстоятельство часто не учитывалось в ранних работах. Поэтому желательно проведение комплексных экспериментальных исследований. Как нам известно, такой комплексный подход до настоящего времени выполнен только для пары $\text{Na}^+ - \text{Ne}$ [3]. Для пары $\text{Na}^+ - \text{Ar}$ имеющиеся экспериментальные данные для абсолютных сечений ионизации, перезарядки и возбуждения в области энергии 0.5–10.0 keV фрагментарны и ненадежны.

Методика измерений

Измерения сечений ионизации и перезарядки проводились модифицированным методом поперечного электрического поля. Суть стандартного метода поперечного поля состоит в сборе с помощью электрического поля вторичных ионов и электронов, образующихся при прохождении пучка ионов через газовую мишень. Из-за отмеченных во введении особенностей исследуемых пар стандартный метод измерений не обеспечивает в этом случае надежности полученных результатов.

В настоящей работе в обычную схему измерительной части установки были внесены изменения, которые позволили определить значения токов вторичных ионов и электронов при наличии у этих частиц значительных кинетических энергий и дополнительно получить сведения об энергетических спектрах вторичных ионов и свободных электронов.

При медленных столкновениях сечение ионизации с точностью лучше 1% соответствует сечению образования свободных электронов, а сечение перезарядки равно разности сечений образования вторичных положительных ионов и свободных электронов. Измерения сечений образования вторичных положительных ионов и свободных электронов проводились на масс-спектрометрической установке, подробно описанной в [4].

Ионный пучок проходил через масс-анализатор и направлялся в камеру столкновений, которая наполнялась

газом-мишенью. Образующиеся электроны и вторичные ионы собирались системой измерительных электродов. При регистрации вторичных ионов принимались меры для устранения эффектов, связанных с рассеянием налетающих ионов и их попаданием на измерительные электроды. Напомним, что минимальный угол, на который должны были бы рассеяться ионы, чтобы попасть на эти электроды, составлял $18\text{--}20^\circ$, тогда как исходя из кинематики столкновения максимальный угол рассеяния ионов для пары $\text{Na}^+ - \text{Ag}$ составляет $\sim 30^\circ$. Регистрация токов электронов и ионов проводилась с помощью электрода, максимально приближенного к входной щели. В области этого электрода потребовалось компенсирование неоднородности электрического поля. При регистрации вторичных электронов измерения проводились на средних электродах (см. [4]), при этом для предотвращения попадания на электроды рассеянных ионов на них подавался достаточно высокий положительный потенциал ($\sim 100\text{ eV}$). Погрешности измерений сечений ионизации для пары $\text{Na}^+ - \text{Ag}$ во всем исследованном интервале энергий составляют 10% и определяются в основном погрешностью измерения давления газа-мишени.

Погрешность измерений сечений перезарядки при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ag}$ при энергии ионов до 3.5 keV оценивается нами в 10% и определяется в основном погрешностью измерений давления газа-мишени. При повышении энергии погрешность возрастает и при энергиях, больших $4\text{--}4.5\text{ keV}$, достигает 20%. Увеличение погрешности измерений в этой области энергий связано со сближением величин сечений образования вторичных положительных ионов и свободных электронов.

Измерения сечений возбуждения были проведены методом оптической спектроскопии в вакуумно-ультрафиолетовом и видимом диапазонах ($\lambda 100\text{--}600\text{ nm}$) спектра [5]. Свечение, возникающее при возбуждении сталкивающихся частиц, наблюдалось под углом 90° к направлению ионного пучка. Спектральный анализ свечения осуществлялся двумя монохроматорами. В видимой области ($\lambda 250\text{--}800\text{ nm}$) использовался монохроматор МДР-2. Спектральный анализ излучения в вакуумно-ультрафиолетовой (ВУФ) области спектра ($\lambda 50\text{--}250\text{ nm}$) производился с помощью вакуумного монохроматора типа Сейя-Намиока с тороидальной дифракционной решеткой.

Абсолютные величины сечений возбуждения исследованных в настоящей работе резонансных линий натрия и аргона определялись путем сравнения измеренных сигналов с сигналами при возбуждении молекулярных полос первой отрицательной системы иона молекулярного азота электронным ударом [6]. При этом особое внимание было обращено на надежное определение и контроль за относительной и абсолютной спектральной чувствительностью системы регистрации света. Относительная погрешность измерений сечения возбуждения в настоящей работе составляет 5%, а абсолютная не превышает 15%.

Результаты измерений и обсуждение

Полученные в работе энергетические зависимости сечений ионизаций, перезарядки и функции возбуждения резонансных линий атома натрия ($\lambda 589.0\text{--}589.6\text{ nm}$, переход $3p\text{--}3s$) и атома аргона ($\lambda 104.8$ и 106.7 nm , переходы $4s$; $4s^1\text{--}3p$) при столкновениях ионов натрия с атомами аргона приведены на рис. 1 и 2. Кроме того, в работе оценены энергии электронов, освобождающиеся при столкновениях. Оценки получены из измерений зависимостей токов электронов на измерительных электродах от величин потенциалов, подававшихся на них для сбора электронов.

Сопоставление полученных сечений ионизации при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ag}$ (рис. 1, кривая I) с данными [7] (рис. 1, кривая I') показывает, что данные работ удовлетворительно согласуются.

Сравнение наших данных по перезарядке при энергии $E = 1.5\text{ keV}$ возможно с сечениями, полученными интегрированием дифференциальных по углу рассеяния сечений одноэлектронного захвата и захвата с возбуждением иона мишени из работы [8], величина которых составляет $9 \cdot 10^{-18}$ и $1.3 \cdot 10^{-18}\text{ cm}^2$ соответственно. Сопоставление суммарного значения этих сечений (рис. 1, $2''$) с нашими данными показывает, что расхождение составляет три раза.

Сопоставление данных по функциям возбуждения атомов аргона (прямое возбуждение) и натрия (резонансная линия) возможно лишь с данными работы [8]. Как видно из рис. 2, измеренное суммарное значение сечений возбуждения атома аргона ($4s$ и $4s^1$) и атомов натрия

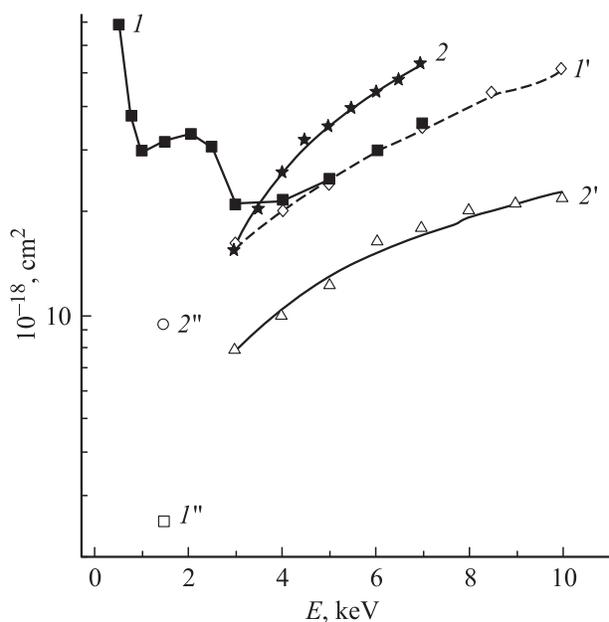


Рис. 1. Зависимость сечений ионизации и перезарядки от энергий ионов при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ag}$: I — ионизация, данные настоящей работы; I' — данные [8], I'' — данные [7]; 2 — перезарядка, данные настоящей работы; $2'$ — данные [5]; $2''$ — данные [7].

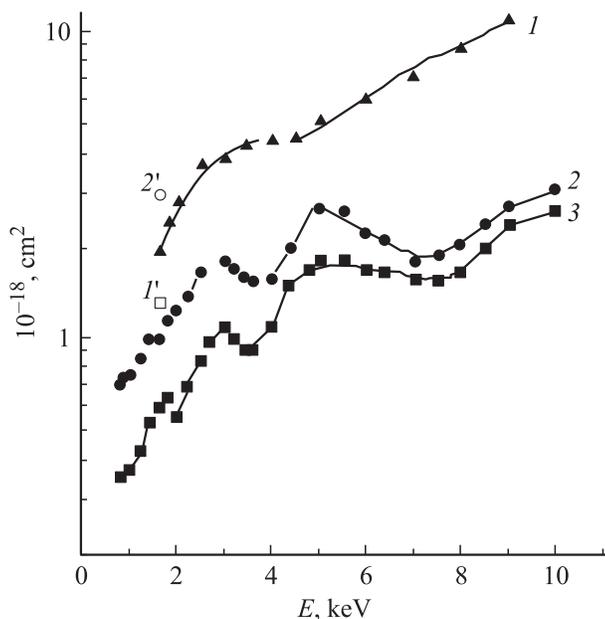


Рис. 2. Функция возбуждения резонансных линий атомов натрия и аргона при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ar}$: 1 — NaI (λ 589.0–589.6 nm, переход $3p-3s$); 2 — ArI (λ 104.8 nm, переход $4s-3p$); 3 — ArI (λ 106.7 nm, переход $4s^1-3p$); 1', 2' — данные [7].

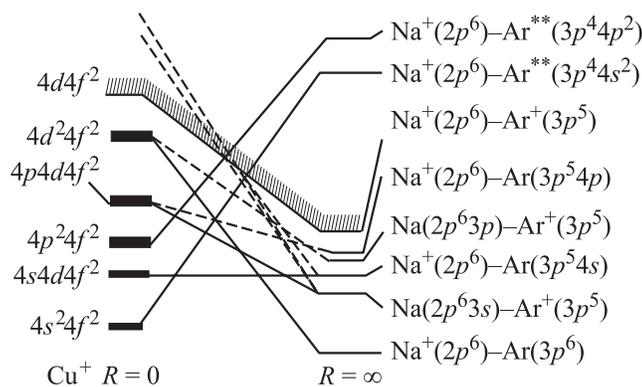


Рис. 3. Схематическая корреляционная диаграмма диабатических термов системы $\text{Na}^+ - \text{Ar}$: сплошная линия — Σ -состояние; штриховая — Π -состояние.

удовлетворительно согласуется с полученными в этой работе данными (рис. 2, 1' и 2'' соответственно).

Для анализа результатов воспользуемся схематической корреляционной диаграммой диабатических квази-молекулярных термов систем сталкивающихся частиц, построенной с использованием правил Бара–Лихтена [9]. Эта диаграмма приведена на рис. 3.

Из исследуемых процессов наиболее интересным является процесс возбуждения при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ar}$. Для этой пары наглядно проявляется квази-молекулярный характер взаимодействия. При исследовании функции возбуждения линии атома аргона (λ 104.8 и 106.7 nm, переходы $4s$, $3s^1-3p$) обнаружены осцил-

ляционные структуры (рис. 2, кривые 3 и 2 соответственно).

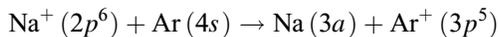
Из диаграммы (рис. 3) видно, что возбуждение состояния $\text{Ar}(4s)$ может происходить в результате $\Sigma - \Sigma$ -перехода между входным термом и термом, отвечающим этому состоянию, или за счет каскадного перехода $4p-4s$ в изолированном атоме. При этом состояние атома $\text{Ar}(4p)$ эффективно возбуждается за счет вращательного $\Sigma - \Pi$ -перехода при малых межъядерных расстояниях. Наблюдаемая осцилляционная структура, сравнительно малая величина сечения ($\sigma \sim 10^{-18} \text{ cm}^2$), а также большая глубина осцилляции (см. рис. 2, кривые 2 и 3) указывает, согласно работе [10], на то, что в процессе возбуждения существенным является вклад вращательного $\Sigma - \Pi$ -перехода с заселением $4p$ -уровня атома Ar . При этом осцилляции обусловлены интерференцией энергетически близких квази-молекулярных состояний систем $\text{Na}^+ - \text{Ar}(4p)$ и $\text{Na}(3p) - \text{Ar}$. Однако при таком предположении, согласно модели интерференции [2], в энергетической зависимости сечения возбуждения $\text{Na}(3p)$ (рис. 2, кривая 1) следует ожидать осцилляционную структуру в противофазе с обнаруженной для линий атома аргона. На энергетической зависимости сечения возбуждения атома Na (λ 589.0–589.6 nm, переход $3p-3s$) наблюдается лишь слабовыраженная структурная особенность. Поэтому можно предположить, что в возбуждении $\text{Na}(3p)$ вносят вклад и другие каналы, например захват электрона с возбуждением иона мишени, которые могут сгладить осцилляционную структуру.

Сглаживание может происходить также из-за влияния каскадных переходов с вышележащих уровней (например, $4s^2 S_{1/2}$, $3d^2 D_{3/2}$) на уровень $3p$. Это предположение было проверено косвенно путем исследования отношения сечений возбуждения состояний натрия $3p^2 P_{1/2}$ и $3p^2 P_{3/2}$. Было установлено, что отношение сечений $\sigma(3p^2 P_{1/2})/\sigma(3p^2 P_{3/2})$ во всем энергетическом диапазоне отличается от статистического заселения и составляет ~ 0.7 . Вероятности электронных переходов на эти уровни с уровней $4s^2 S_{1/2}$ и $3d^2 D_{3/2}$ таковы, что переход с уровня $4s^2 S_{1/2}$ не меняет статистического заселения, а с $3d^2 D_{3/2}$ существенно его меняет. При этом в пять раз с большей вероятностью заселяется именно $3p^2 P_{1/2}$ -уровень. Следовательно, отсутствие выраженной осцилляционной структуры на сечении возбуждения линии атома натрия может быть связано с влиянием каскадных переходов с вышележащих уровней.

При определении процессов, ответственных за перезарядку при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ar}$, сопоставим полные сечения перезарядки (рис. 1, кривая 2) с суммарным сечением излучения резонансных уровней атома натрия (λ 589.0–589.6 nm, рис. 2, кривая 1). Учитывая правила отбора и соотношение сил осцилляторов для переходов, можно показать, что излучение любого из уровней атома натрия примерно в половине случаев завершается переходом атома в резонансное состояние с последующим его излучением. Поэтому удвоенное сечение высвечивания атома натрия дает представление

о сечении захвата в возбужденном состоянии. Как видно из рис. 2 (кривая 1), сечение излучения резонансных уровней атома натрия при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ar}$ увеличивается с ростом энергии ионов, составляет при энергии ионов $E = 1.5 \text{ keV} \sim 1.4 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$, а при $5-7 - 6 \cdot 10^{-18}$.

Из сравнения поведения двух кривых можно сделать вывод о двух областях неадиабатичности (области энергий ионов $E = 0.5-2$ и $3-7 \text{ keV}$), ответственных за процесс захвата электрона. При рассматриваемых столкновениях процесс захвата электрона при низких энергиях (до $E = 2 \text{ keV}$) осуществляется в результате захвата электрона в основное состояние атома с образованием иона также в основном состоянии



дефект энергии — 10.6 eV (одноэлектронный процесс) и захват электрона в основное состояние атома с образованием иона в возбужденном состоянии



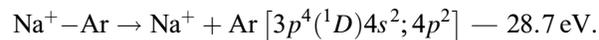
двухэлектронный процесс [8]. В области энергии $E > 3 \text{ keV}$ доминирующую роль в процессе перезарядки играет захват электрона в возбужденное состояние атома натрия $\text{Na} (2p^6 3p)$, с образованием иона аргона в основном состоянии $\text{Na}^+ + \text{Ar} \rightarrow \text{Na} (3p) + \text{Ar}^+ - 12.7 \text{ eV}$. Причем определенную роль в захвате играют Σ - Π -переходы (см. рис. 3), связанные с вращением межъядерной оси.

Как показывают измерения, для механизма ионизации при столкновениях $\text{Na}^+ - \text{Ar}$ характерно освобождение преимущественно медленных электронов с энергиями $E < 15 \text{ eV}$. Чтобы оценить вклад процесса прямой ионизации, с помощью результатов работы [11] был проведен расчет сечения этого процесса. Согласно [11], процесс ионизации обусловлен выходом диабатического терма в сплошной спектр в области неадиабатического взаимодействия молекулярных орбиталей с одинаковыми в пределе объединенного атома орбитальными моментами. Анализ корреляций молекулярных орбиталей в системе $\text{Na}^+ - \text{Ar}$ показывает (рис. 3), что $3p$ -электроны (ионизация которых рассматривается) атомов Ar в пределе объединенного атома соответствует $4d$ -электронам иона Cu^+ . Таким образом, при оценке сечения была выбрана величина орбитального момента $l = 2$. Энергия связи E_{nl} электронов в области неадиабатичности была принята равной энергий связи $4d$ -электронов иона Cu^+ .

Эффективный заряд Z_{eff} был определен путем интерполяции данных работы Хартри [12]. Для $4d$ -электронов Cu^+ было получено $Z_{\text{eff}} = 3.1$. В результате вычисления сечения прямой ионизации с этими параметрами было установлено, что вклад этого процесса при энергии ионов Na 3 keV составляет $\leq 1\%$, а при 6 keV не превышает 10% . Тем же способом был определен вклад в измеренное сечение ионизации, сечение выхода электронов в процессе обдирки налетающего иона.

Как видно из диаграммы (рис. 3) для пары $\text{Na}^+ - \text{Ar}$, $2p$ -электроны иона Na^+ коррелируют с $4f$ -электронами иона Cu^+ . Поэтому при оценке сечения была выбрана величина орбитального момента $l = 3$, а Z_{eff} считалось равным 3.1 — таким же, как и для $4d$ -электронов иона Cu^+ . В результате расчета было получено, что при энергии ионов 3 keV вклад обдирки в полное сечение выхода электронов составляет $< 0.1\%$, а при энергии ионов 6 keV составляет менее 4.5% . Следовательно, можно сделать вывод, что вклады этих процессов в сечение ионизации во всей исследованной области энергий ионов являются несущественными.

Последовательно оценивая также и другие возможные механизмы освобождения электронов с энергией $E < 10-15 \text{ eV}$, приходим к выводу, что основной механизм их появления (наряду с вкладом других каналов) связан с распадом автоионизационных состояний в изолированном атоме. Этими состояниями, как видно из [7,13], являются состояния с двумя возбужденными электронами.



В заключение отметим, что комплексный подход к исследованию неупругого рассеяния атомных частиц с надежным определением вероятностей и скоростей процессов составляют основу для определения зарядового баланса при анализе практически важных свойств низкотемпературной плазмы.

Список литературы

- [1] Bobashev S.V. // Adv. Atom. Molec. Phys. 1978. Vol. 14. P. 341.
- [2] Анкудинов В.Н., Бобашев С.В., Перель В.И. // ЖЭТФ. 1971. Т. 60. С. 906.
- [3] Ostgaard Olsen J., Andersen T., Barat M. et al. // Phys. Rev. 1979. Vol. 19. P. 1457.
- [4] Кикиани Б.И., Ломсадзе Р.А., Мосулишвили Н.О. и др. // ЖТФ. 1985. Т. 55. С. 1612.
- [5] Кикиани Б.И., Гочиташвили М.Р., Квижинадзе Р.В., Анкудинов В.А. // ЖЭТФ. 1984. Т. 87. С. 1906–1913.
- [6] Скубенич В.В., Запесочный И.Р. // Геомагнетизм и аэронавигация. 1981. Т. 21. С. 481.
- [7] Kita S., Hasagawa T., Tanuma H., Shimakura N. // Phys. Rev. A. 1995. Vol. 52. N 3. P. 2070–2082.
- [8] Флакс И.П., Кикиани Б.И., Огурцов Г.Н. // ЖТФ. 1965. Т. 35. С. 2076–2082.
- [9] Barat M., Lichten W. // Phys. Rev. A. 1972. Vol. 6. P. 211.
- [10] Бобашев С.В., Харченко В.А. // ЖЭТФ. 1976. Т. 71. С. 1329.
- [11] Соловьев Е.А. // ЖЭТФ. 1981. Т.81. Ч. 1681.
- [12] Хартри Д. Расчеты атомных структур. М.: ИЛ, 1960. Гл. 7. § 5.
- [13] Jrgensen K., Andersen N., Olsen J. // J. Phys. B. Vol. 11. 1978. P. 3951.