

УДК 537.534.9

ВКЛАД АВТОИОНИЗАЦИОННЫХ ПРОЦЕССОВ В ЭЛЕКТРОННЫЕ ТОРМОЗНЫЕ ПОТЕРИ

© 2020 г. А. Н. Зиновьев^а, *, П. Ю. Бабенко^а, А. П. Шергин^а

^аФТИ им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, 194021 Россия

*e-mail: Zinoviev@inprof.ioffe.ru

Поступила в редакцию 18.01.2020 г.

После доработки 24.02.2020 г.

Принята к публикации 26.02.2020 г.

При столкновениях ионов кэВ-энергий вследствие выдвигания молекулярных орбиталей происходит возбуждение автоионизационных состояний. Показано, что значения сечения электронного торможения можно оценить, используя связь между сечением возбуждения автоионизационного состояния и сечением ионизации. Для случаев, когда сечения ионизации неизвестны, для расчета сечений ионизации при возбуждении оболочек L и M предлагается использовать разработанную нами универсальную зависимость сечения ионизации от параметров партнеров соударения. Модель обосновывает доминирующий вклад образования автоионизационных состояний в величину сечения электронного торможения в рассматриваемом диапазоне энергий и предсказывает пороговую зависимость сечения от энергии бомбардирующих ионов.

Ключевые слова: электронные тормозные способности, сечения ионизации, внутренние вакансии, атомные столкновения, неупругие потери энергии.

DOI: 10.31857/S1028096020110187

ВВЕДЕНИЕ

Обзор современного состояния работ по теории торможения частиц предоставлен в [1, 2]. Как правило, теория удовлетворительно описывает потери при высоких энергиях частиц и вблизи максимума сечения торможения. Фирсов О. Б. [3] предложил подход для описания тормозных потерь при медленных столкновениях. Однако имеются значительные расхождения теории с экспериментом. На наш взгляд, это связано с тем, что при медленных столкновениях игнорируется ионизация вследствие образования и распада автоионизационных состояний.

Общепризнанной для описания неупругих потерь энергии при столкновении ионов кэВ-энергий является модель выдвигающихся молекулярных орбиталей [4]. При сближении частиц до межъядерных расстояний R_c , сравнимых с размерами L -оболочек, молекулярная орбиталь $4f\sigma$, формирующаяся из $2p$ -уровней сталкивающихся атомов и содержащая 2 электрона, резко выдвигается и пересекает несколько верхних вакантных уровней. В связи с переходами электронов с рассматриваемой орбитали на свободные уровни при разлете частиц может образоваться одна или две вакансии на рассматриваемой орбитали, при этом возникает автоионизационное состояние. Оно распадается путем оже-перехода, что приво-

дит к ионизации частиц. Таким образом, формирование автоионизационного состояния приводит к последующей ионизации. Выдвигание $4f\sigma$ -орбитали происходит при сравнительно больших межъядерных расстояниях и вследствие большого геометрического фактора вносит наибольший вклад в сечение ионизации, при меньших расстояниях следует учитывать и выдвигание $3d\sigma$ -орбитали.

При возбуждении M -оболочек в спектрах потерь энергии появляются дискретные линии с разными порогами возбуждения. В случае возбуждения M -оболочки несколько орбиталей ($5f\sigma$, $5g\sigma$, $6h\sigma$ и т.д.) выдвигаются, что также приводит к образованию автоионизационных состояний. Таким образом, основным механизмом неупругих потерь при столкновениях между частицами кэВ-энергий является механизм выдвигания молекулярных орбиталей с последующим образованием автоионизационных состояний, а их оже-распад приводит к ионизации партнеров столкновения.

Следует отметить, что при скоростях соударения, сравнимых со скоростью электронов в наружных оболочках, может происходить опустошение выдвигающейся орбитали за счет прямых переходов электронов в континуум, что приводит

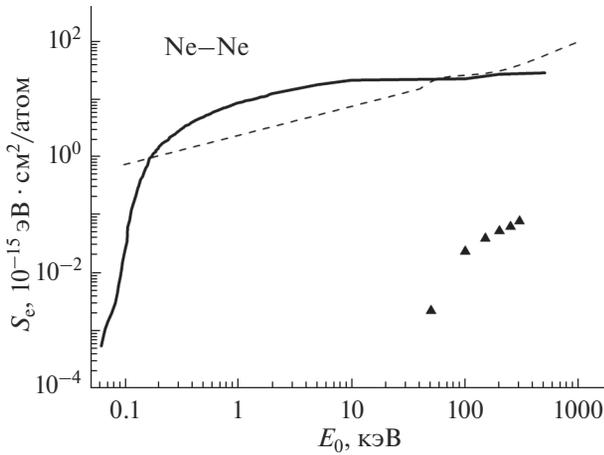


Рис. 1. Сечение электронного торможения S_e для Ne–Ne (твердая фаза). Сплошная линия – оценка авторов работы, основанная на сечении ионизации. Штриховая линия – SRIM [6]. Треугольниками показана проведенная авторами оценка вклада ионизации K -оболочки в случае Ne–Ne.

к дополнительному росту потерь энергии, связанному с энергиями образующихся электронов.

Электронная тормозная способность dE/dx и неупругие потери энергии при столкновениях связаны как

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi}{V_0} \int [Q_0 + Q_1] W(b) b db. \quad (1)$$

Здесь V_0 – объем одного атома в твердой мишени, b – параметр удара, член Q_0 обусловлен возбуждением плазмонов и другими возбуждениями при прохождении частицы через мишень, а член Q_1 отражает вклад от ионизации частиц. $W(b)$ является вероятностью неупругого перехода. Соотношение между сечением образования автоионизационного состояния σ_v и сечением ионизации σ^{ion} имеет вид $\sigma_v = 1/N\sigma^{ion}$, где N – число электронов, образующихся при распаде автоионизационного состояния. Наконец, уравнение (1) можно переписать так:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{1}{NV_0} \sum_{nlj} Q_{nlj} \sigma_{nlj}^{ion}. \quad (2)$$

Здесь суммирование производится по всем выдвигающимся молекулярным орбиталям с квантовыми числами n, l, j . Поэтому для оценки вклада процессов автоионизации в dE/dx необходимо знать значения Q_{nlj} и сечений ионизации σ_{nlj}^{ion} . Предварительные результаты по апробации указанного подхода были опубликованы в нашей работе [5].

Электронная тормозная способность dE/dx и сечение электронного торможения S_e связаны со-

отношением: $(-dE/dx) = nS_e$, где n – число атомов мишени в единице объема.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

На рис. 1 проведено сравнение сечения электронного торможения S_e для случая столкновений ионов Ne с Ne, рассчитанных по формуле (2), со значениями из базы данных SRIM [6]. Сечение ионизации для случая столкновений $Ne^+ - Ne$ получено из данных [7–10]. Значение $Q = 45$ эВ авторы взяли из работы [11]. Как следует из рис. 1, наблюдается удовлетворительное согласие наших расчетов со значениями из базы данных SRIM. Автоионизационная модель дает значения, превышающие значения из базы данных SRIM. Примечательно, что предлагаемая модель предсказывает пороговый характер зависимости сечения электронного торможения S_e , поскольку неупругие потери энергии резко возрастают при достижении межъядерных расстояний, необходимых для формирования автоионизационных состояний. На рис. 1 также представлена оценка вклада ионизации K -оболочки. В настоящее время, экспериментальные данные для рассматриваемой системы $Ne^+ - Ne$ и диапазона энергий соударения отсутствуют.

Имеется возможность оценки сечения ионизации L -оболочки для различных неизученных комбинаций ион–твердое тело. Неизвестное сечение ионизации можно оценить с помощью масштабирования, предложенного в нашей работе [12]. Вероятность образования L -вакансии на межъядерном расстоянии R_0 можно описать выражением

$$W(R_0) = \frac{1}{\beta + \exp\left[\gamma\left(\frac{R_0}{R_c} - 1\right)\right]}, \quad (3)$$

где $\beta = 1.02$, $\gamma = 22.8$, а параметр R_c определяется из условия $W(R_c) = 0.5$ и близок к межъядерному расстоянию, на котором $4f\sigma$ -орбиталь пересекает незаполненные верхние уровни. На рис. 2 приведена зависимость параметра R_c от суммы зарядов ядер сталкивающихся частиц. Эта зависимость была получена в [12] путем обработки существующих экспериментальных данных о порогах возбуждения L_{23} -оболочки при столкновениях атомных частиц как в газовой (открытые символы), так и в твердой фазах (сплошные символы). Полученная зависимость хорошо согласуется с расчетами положения точки пересечения молекулярных орбиталей для различных систем (пунктирная линия) и применима при $Z_1 + Z_2 \geq 20$. На рис. 2 приведены также значения параметра R_c при выдвигении орбитали $3d\sigma$, полученные из

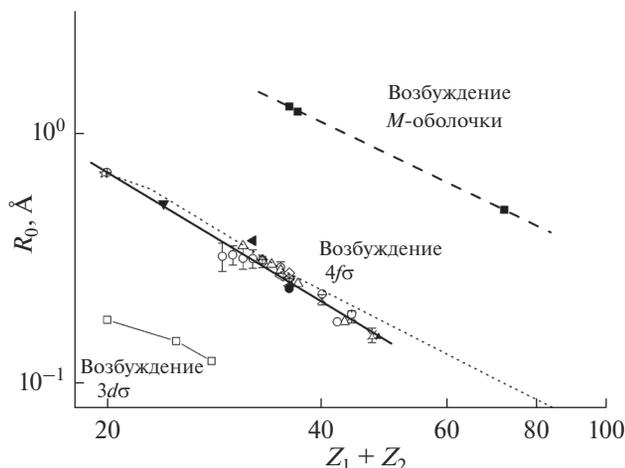


Рис. 2. Параметр R_c в зависимости от суммы $Z_1 + Z_2$ зарядов ядер сталкивающихся партнеров [12]. Сплошная линия — универсальная зависимость для случая образования L -вакансий из-за выдвигания $4f\sigma$ -орбитали, линия с пустыми квадратами — зависимость для $3d\sigma$ -орбитали. Штриховая линия — аналогичная зависимость для возбуждения M -оболочки. Пунктир — расчетные положения точки пересечения молекулярных орбиталей.

анализа поведения неупругих потерь энергии и заряда рассеянной частицы от достигнутого межъядерного расстояния для систем $\text{Ne}-\text{Ne}$ [13], $\text{N}-\text{Ar}$ и $\text{Ne}-\text{Ar}$ [14] (сплошная линия с пустыми квадратами).

Как показано на рис. 3, предложенная формула (3) хорошо описывает экспериментальные данные для столкновений в твердом теле [11].

Таким образом, сечение ионизации, связанное с возбуждением L_{23} -оболочки, может быть получено следующим образом: сначала определяется параметр R_c по данным, показанным на рис. 2, а затем сечение ионизации рассчитывается путем интегрирования $W[R_0(b)]$ (3) по всем параметрам удара. Зависимость R_0 от b может быть рассчитана с использованием потенциала взаимодействия [15]. Энергии образования вакансии L_{23} можно получить из измерений [14–17].

Имеется и другой способ: в нашей работе [12] было показано, что сечение ионизации для случая возбуждения оболочки L_{23} в диапазоне $20 \leq Z_1 + Z_2 \leq 42$ описывается универсальной кривой (рис. 4) с нормализацией сечений на фактор πNR_c^2 и с нормализацией шкалы энергий на фактор $U(R_c)/E_{\text{cms}}$, где $U(R_c)$ — величина потенциала взаимодействия при межъядерном расстоянии R_c , а E_{cms} — энергия столкновения в системе центра масс. Универсальная зависимость, получена интегрированием зависимости $W(R_0)$ (3) по параметрам удара:

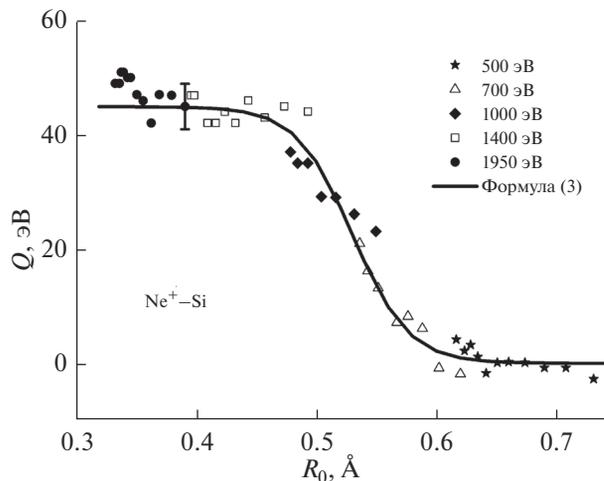


Рис. 3. Зависимость неупругих потерь энергии Q для системы Ne^+-Si от расстояния наибольшего сближения R_0 , измеренная в работе [11] для разных энергий соударения. Зависимость, предсказанная формулой (3), показана сплошной линией.

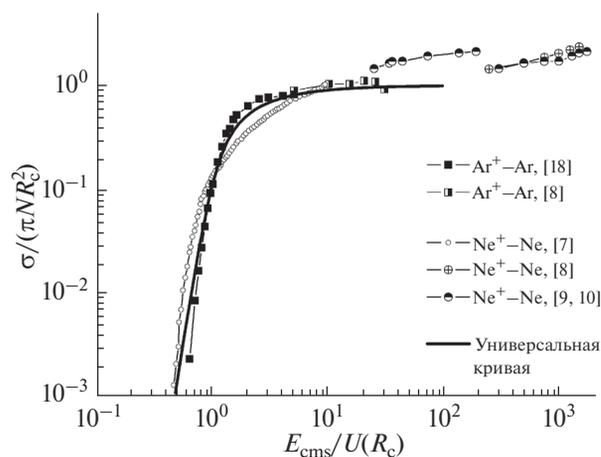


Рис. 4. Сечения образования L -вакансий в столкновениях Ar^+-Ar , измеренные в [17], и сечения ионизации для системы Ne^+-Ne [7–10], нормированные на коэффициент πNR_c^2 , как функция $E_{\text{cms}}/U(R_c)$. Сплошная линия — сечение, полученное с помощью интегрирования зависимости $W(R_0)$ (3) по параметрам удара [12].

$$\sigma_{nlj}^{\text{ion}} = 2\pi N \int_0^{d/2} W_{nlj}(R_0) b db. \quad (4)$$

Как видно из рис. 4, универсальная кривая хорошо описывает как случай ионизации наружных L -оболочек в системе $\text{Ne}-\text{Ne}$ [7–10], так и случай образования внутренних L_{23} -вакансий при столкновениях $\text{Ar}-\text{Ar}$ [18]. С помощью этого метода

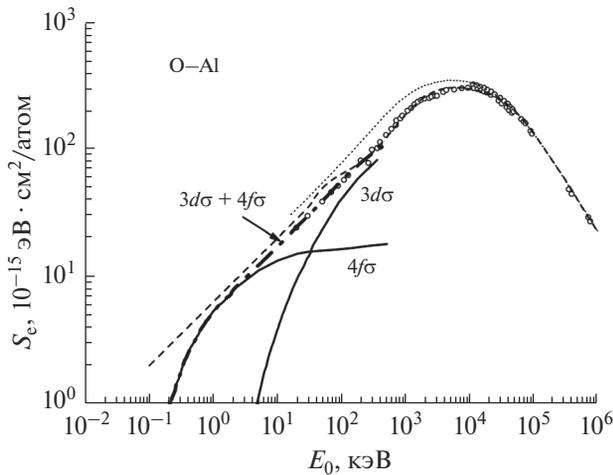


Рис. 5. Зависимость сечения электронного торможения S_e для случая O–Al от энергии соударения. Точки – эксперимент [20], штриховая линия – данные SRIM [6], пунктир – расчет [22]. Полученные авторами оценки вклада от выдвигания $3d\sigma$ - и $4f\sigma$ -орбиталей показаны тонкими сплошными линиями, штрихпунктирная линия – суммарная кривая.

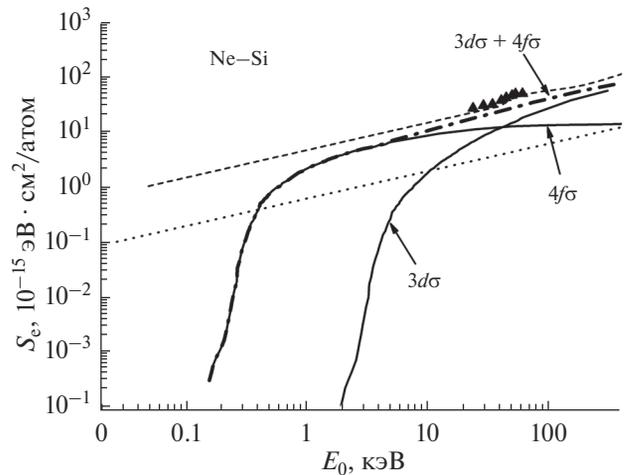


Рис. 6. Зависимость сечения электронного торможения для случая Ne–Si от энергии соударения. Точки – эксперимент [21], штриховая линия – данные SRIM [6]. Полученные авторами оценки вклада от выдвигания $3d\sigma$ - и $4f\sigma$ -орбиталей показаны тонкими сплошными линиями, пунктирной линией – оценка вклада торможения на электронах проводимости, штрихпунктирной – суммарная кривая.

были сделаны оценки вклада ионизации L -оболочек для систем O–Al и Ne–Si (рис. 5, 6). Возбуждение $L_{2,3}$ -оболочки в легком партнере соударения связано с выдвиганием $4f\sigma$ -орбитали, а в более тяжелом партнере – с выдвиганием $3d\sigma$ -орбитали. Величина неупругой потери энергии в канале, связанном с выдвиганием $4f\sigma$ составляла 35 и 45 эВ для систем O–Al и Ne–Si соответственно. Величина Q для $3d\sigma$ -орбитали зависит от рассматриваемой энергии и оценивалась нами из экспериментально измеренной зависимости Q от межъядерного расстояния [19].

Как видно из рис. 5 и 6, при небольших энергиях доминирует вклад ионизации, связанной с образованием автоионизационных состояний при выдвигании $4f\sigma$ -орбитали, затем необходимо учитывать вклад выдвигания $3d\sigma$. Имеется хорошее согласие суммарной кривой как с экспериментальными данными [20, 21], так и с базой данных SRIM [6] и с результатами расчетов Зигмунда и др. [22] при использовании бинарной теории при описании взаимодействия частиц.

Вклад от потери энергии при торможении на электронах внешней оболочки атома мишени мы оценили для случая Ne–Si, используя формулу, приведенную в [23] для потери энергии при взаимодействии иона с газом свободных электронов в твердом теле. При $E_0 = 10$ кэВ это значение составляет всего 13% от данных, представленных в SRIM (рис. 6).

Аналогичный подход можно использовать для оценки сечения ионизации в случае возбуждения

M -оболочки. На рис. 7 рассматриваются столкновения ионов аргона с твердым аргоном. Сечения ионизации для столкновений $Ar^+–Ar$ получены из работ [10–12, 24]. В случае M -оболочки наблюдалось образование состояний с энергиями 14, 28 и 50 эВ [25]. Вклад образования вакансий в $L_{2,3}$ -оболочке также учитывался. Сечение образова-

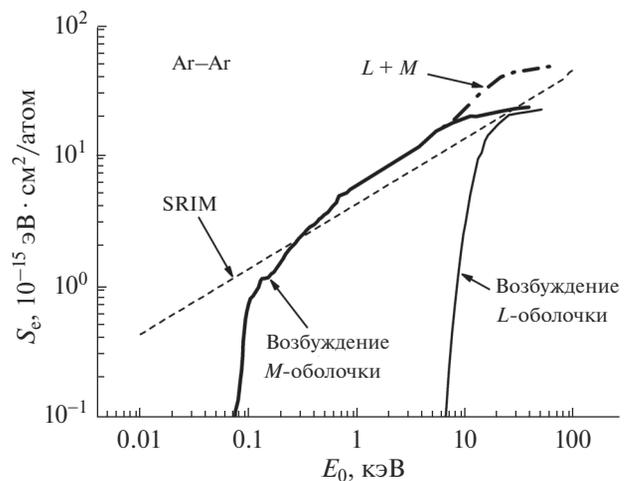


Рис. 7. Сравнение сечения электронного торможения, представленного в базе данных SRIM [6] (штриховая линия), и оценка авторов для случая Ar–Ar, полученная на основе сечений ионизации, взятых из [10–12, 24] (толстая сплошная линия). Показан также вклад образования $L_{2,3}$ -вакансий [18] – тонкая сплошная линия. Штрихпунктирная линия – сумма возбуждений L - и M -оболочек.

ния L_{23} -вакансий было получено из измерений сечения образования оже-электронов при распаде вакансии [18]. Энергия образования L -вакансии была принята равной 340 эВ [14]. Штрихпунктирная линия на рис. 7 представляет собой сумму вкладов в сечение электронного торможения S_e от возбуждения L и M -оболочек. Как видно, возбуждение L -оболочки увеличивает значение S_e в два раза. Этот рисунок также демонстрирует пороговое поведение сечения электронного торможения S_e . Как и в других рассмотренных случаях, предлагаемая модель предсказывает доминирующий вклад процессов формирования автоионизационных состояний и последующей ионизации в сечение электронного торможения S_e в рассматриваемом диапазоне энергий соударения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что значения сечения электронного торможения S_e можно оценить, используя связь между сечением возбуждения автоионизационного состояния и сечением ионизации.

Для случаев, когда сечения ионизации неизвестны, для расчета сечений ионизации при возбуждении оболочек L и M предлагается использовать разработанную нами универсальную зависимость сечения ионизации от параметров партнеров соударения.

Предложенная модель обосновывает доминирующий вклад образования автоионизационных состояний в величину сечения электронного торможения S_e в рассматриваемом диапазоне энергий и предсказывает пороговую зависимость S_e от энергии бомбардирующих ионов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Sigmund P.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2017. V. 406. P. 391.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2016.12.004>
2. *Montanari C.C., Miraglia J.E.* // Phys. Rev. A. 2017. V. 96. Iss. 1. P. 012707.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.96.012707>
3. *Firsov O.B.* // Sov. Phys. JETP. 1959. V. 9. Iss. 5. P. 1076.
4. *Fano U., Lichten W.* // Phys. Rev. Lett. 1965. V. 14. Iss. 16. P. 627.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.14.627>
5. *Зиновьев А.Н., Бабенко П.Ю., Мелузова Д.С. и др.* // Письма ЖЭТФ. 2018. Т. 108. Вып. 9. С. 666.
<https://doi.org/10.1134/S0370274X18210129>
6. *Ziegler J.F., Biersack J.P.* // SRIM – <http://www.srim.org>
7. *Hayden H.C., Amme R.C.* // Phys. Rev. 1966. V. 141. Iss. 1. P. 30.
<https://doi.org/10.1103/PhysRev.141.30>
8. *Cacak R.K., Jorgensen T.* // Phys. Rev. A. 1970. V. 2. Iss. 4. P. 1322.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.2.1322>
9. *Gilbody H.B., Hasted J.B.* // Proc. Roy. Soc. A. 1957. V. 240. Iss. 1222. P. 382.
<https://doi.org/10.1098/rspa.1957.0093>
10. *Gilbody H.B., Hasted J.B., Ireland J.V. et al.* // Proc. Roy. Soc. A. 1963. V. 274. Iss. 1356. P. 40.
<https://doi.org/10.1098/rspa.1963.0113>
11. *Xu F., Manico G., Ascione F. et al.* // Phys. Rev. A. 1998. V. 57. Iss. 2. P. 1096.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.57.1096>
12. *Babenko P.Yu., Zinoviev A.N., Shergin A.P.* // Nucl. Instrum. Methods. B. 2015. V. 354. P. 142.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2014.12.070>
13. *Fuls E.N., Jones P.R., Ziemba F.P., Everhart E.* // Phys. Rev. 1957. V. 107. Iss. 3. P. 704.
<https://doi.org/10.1103/PhysRev.107.704>
14. *Afrosimov V.V., Gordeev Yu.S., Polyanskii A.M., Shergin A.P.* // JETP. 1973. V. 36. Iss. 3. P. 418.
15. *Зиновьев А.Н.* // Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исслед. 2018. № 6. С. 43.
<https://doi.org/10.7868/S0207352818060094>
16. *Afrosimov V.V., Gordeev Yu.S., Polansky A.M., Shergin A.P.* // Tech. Phys. 1972. V. 41. P. 134.
17. *Fastrup B., Hermann G., Smith K.J.* // Phys. Rev. A. 1971. V. 3. Iss. 5. P. 1591.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.3.1591>
18. *Meschi G.G.* PhD Thesis. Ioffe Institute. Leningrad, 1983.
19. *Kessel Q.C., McCaughey M.P., Everhart E.* // Phys. Rev. 1967. V. 153. Iss. 1. P. 57.
<https://doi.org/10.1103/PhysRev.153.57>
20. *Paul H.* Stopping Power for Light Ions. <http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping>.
21. *Grahmann G., Kalbitzer S.* // Nucl. Instrum. Methods. 1976. V. 132. P. 119.
[https://doi.org/10.1016/0029-554X\(76\)90720-5](https://doi.org/10.1016/0029-554X(76)90720-5)
22. *Sigmund P., Schinner A.* // Nucl. Instrum. Methods. B. 2002. V. 195. Iss. 1–2. P. 64.
[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(01\)01162-4](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(01)01162-4)
23. *Echenique P.M., Flores F., Ritchie R.H.* // Solid. State Phys. 1990. V. 43. P. 229.
[https://doi.org/10.1016/S0081-1947\(08\)60325-2](https://doi.org/10.1016/S0081-1947(08)60325-2)
24. *Haugsjaa P.O., Amme R.C.* // J. Chem. Phys. 1970. V. 52. Iss. 9. P. 4874.
<https://doi.org/10.1063/1.1673725>
25. *Bierman D.J., Turkenburg W.C.* // Physica. 1973. V. 67. Iss. 3. P. 533.
[https://doi.org/10.1016/0031-8914\(73\)90166-3](https://doi.org/10.1016/0031-8914(73)90166-3)

Contribution of Autoionization Processes to the Electronic Stopping Power

A. N. Zinoviev^{1, *}, P. Yu. Babenko¹, A. P. Shergin¹

¹*Ioffe Institute, St. Petersburg, 194021 Russia*

**e-mail: Zinoviev@inprof.ioffe.ru*

It is shown that the excitation of autoionization states during collisions of keV-energy ions with a solid plays a determining role in the formation of inelastic energy losses and, accordingly, the electronic stopping cross-section S_e . It is proposed to estimate the S_e values using the relationship between the cross section for auto ionization state excitation and the ionization cross section. For cases where the ionization cross sections are unknown, scaling is used to calculate the ionization cross sections when the L and M -shells are excited. The threshold dependence of S_e versus the energy of the bombarding ions is predicted.

Keywords: electronic stopping power, ionization cross sections, inner shell vacancies, atomic collisions, inelastic energy loss.