

АНАЛИТИЧЕСКОЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЕ СЕЧЕНИЙ ИОНИЗАЦИИ К-ОБОЛОЧЕК ЛАНТАНОИДОВ УСКОРЕННЫМИ ПРОТОНАМИ

В.В. Левенец, А.П. Омельник, А.А. Щур

Национальный научный центр “Харьковский физико-технический институт”
Украина

Поступила в редакцию 28.04.2012

Определены параметры универсальной подгоночной функции для полученных в ННЦ ХФТИ экспериментальных значений сечений ионизации К-оболочки элементов с $57 \leq Z \leq 71$ ускоренными протонами с энергиями 1 – 3 МэВ. Проведено сравнение с существующими моделями. Полученная функция применена для определения содержания лантаноидов абсолютным способом анализа методом ХРИ на выведенном в атмосферу пучке протонов.

Ключевые слова: лантаноиды, К-оболочка, характеристическое рентгеновское излучение, сечение ионизации.

Визначено параметри універсальної підгінної функції для отриманих у ННЦ ХФТИ експериментальних величин перерізів іонізації К-оболонки елементів з $57 \leq Z \leq 71$ прискореними протонами з енергіями 1 – 3 МеВ. Проведено порівняння з існуючими моделями. Отримана формула застосована для визначення вмісту лантаноїдів з використанням абсолютного способу аналізу методом ХРВ на виведеному в атмосферу пучку протонів.

Ключові слова: лантаноїди, К-оболонка, характеристичне рентгенівське випромінювання, переріз іонізації.

Parameters of universal fitting functions are spotted for the measured in NSC KIPT of K-shell cross-sections of ionisation of element with $57 \leq Z \leq 71$ by accelerated protons with energies of 1 – 3 MeV. Comparison of data obtaining with existing models was made. The formula resulting from the fitting is applied to determination of the lanthanides content by method PIXE on external proton beam without reference samples.

Keywords: lanthanides, K-shell, characteristic X-rays, cross-sections of ionisation.

ВВЕДЕНИЕ

Потребность в данных по сечениям ионизации внутренних оболочек атомов существует в разных областях физики: ядерная физика, прикладные аспекты, физика плазмы и т.д. Значительный интерес к этим величинам возникает при количественном анализе методом ХРИ редкоземельных элементов по характеристическому рентгеновскому излучению К-серии. Существуют достаточно развитые теоретические описания процесса ионизации внутренних оболочек атомов протонами, альфа частицами. Они используют приближение плоских волн Борна [1, 2], импульсное [3, 4] или полуклассическое описание [5]. В настоящее время наиболее разработанной и наиболее точно описывающей экспериментальные данные является теория возбужденных стационарных состояний PSS и её модификация – ECPSSR, которая даёт хорошее согласие с экспериментом для атомов элементов со средними порядковыми номе-

рами и протонами с энергиями 1 – 3 МэВ [6]. Однако даже при использовании поправок на кулоновское отклонение налетающей частицы, изменение энергии связи электрона, релятивистские эффекты, различия величин сечений ионизации К-оболочек тяжелых элементов, вычисленные по ECPSSR, с экспериментальными данными могут достигать десятков процентов, что для использования в аналитике недопустимо. При этом расчеты достаточно сложны. Выход из этого положения состоит в создании эмпирической модели, основанной на подгонке существующих экспериментальных данных по сечениям ионизации в “универсальных” координатах

$$(U_k^2 \sigma_k / Z_i^2) = f(E / \lambda U_k),$$

предложенных в работе [3], где E , Z – энергия и заряд налетающей частицы, σ_k – сечение ионизации К-оболочки атома-мишени, U_k – энергия связи электрона, λ – отношение масс электрона и протона. В настоящее время

в практике используются несколько подобных моделей. Однако их адекватное описание хода и величины сечения ионизации К-оболочки атома ограничивается, в основном, элементами с порядковыми номерами до 50. Для более тяжелых элементов эти модели также имеют значительные погрешности при определении сечения. Большинство предложенных моделей позволяют получать эти значения для большого круга элементов, но при этом они не очень хорошо описывают сечения для отдельных групп элементов.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Целью данной работы является разработка эмпирической модели для описания сечения ионизации К-оболочек атомов элементов группы лантана протонами в энергетическом диапазоне 1 – 3 МэВ. К настоящему времени проведено значительное количество измерений величин сечений ионизации К-оболочек возбуждаемых протонами. Одной из первых попыток обобщить полученные результаты и разработать эмпирическую формулу для описания зависимости величины сечения от атомного номера и энергии протонов была предпринята в работе [7]. Зависимость сечения от атомного номера и энергии протонов аппроксимировали выражением вида

$$\ln(\sigma_{\text{exp}} U_k^2) = \sum_{j=0}^n A_j X^j, \quad (1)$$

где: σ_{exp} – значение измеренных сечений ионизации К-оболочки; $X = \ln(E_p/U_k)$; E_p – энергия протонов, n – максимальная степень полинома, A_j – полиномиальные коэффициенты.

Существенно большая база данных – около 4000 экспериментальных точек – была систематизирована и использована для получения аналитического описания подобного (1) в работе [8]. В последней по времени компиляции [9] собран экспериментальный материал по 5400 значениям.

На рис. 1. приведено распределение данных по сечениям для всех элементов на основе этой базы данных. Видно, что основное внимание при измерении сечений ионизации К-оболочки было привлечено к элементам со средними порядковыми номерами и достаточно слабо представлен диапазон лантаноидов.

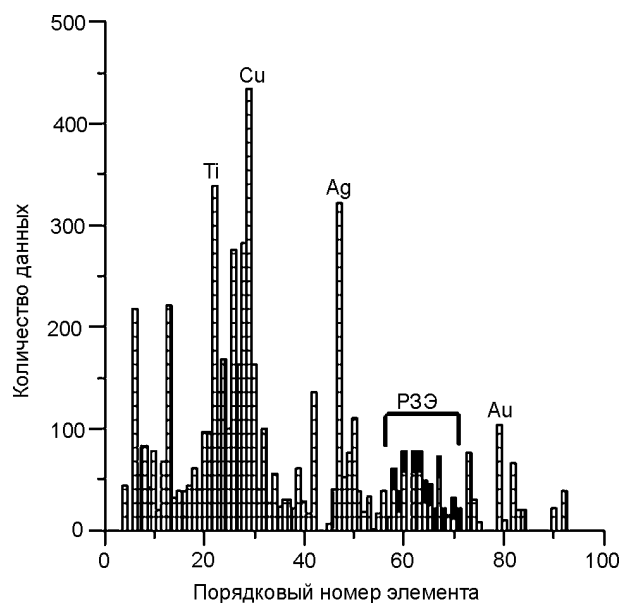


Рис. 1. Распределение данных по сечениям ионизации К-оболочки протонами [9]; черным отмечены данные из работы [10], не вошедшие в [9].

Таким образом, после интенсивного накопления экспериментальных данных по сечениям ионизации протонами К-оболочек атомов элементов со средними порядковыми номерами и создания теории достаточно точно описывающей этот процесс, большинство групп переключилась на другие оболочки (L, M ...), типы и энергии ионов. В связи с этим, для ряда элементов существует незначительный набор данных по сечениям ионизации К-оболочки, в частности, для лантаноидов ($57 \leq Z \leq 71$). Наиболее полные измерения для этого диапазона элементов представлены в работе [10], не вошедшие в указанную компиляцию.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Измерения выполнялись по классической схеме на толстой мишени в предположении изотропности распространения возбуждаемого рентгеновского излучения. Сечение определялось по формуле с учетом конкретной геометрии облучения

$$\sigma_{\text{кx}} = 2,66 \cdot 10^{-37} \frac{A}{\epsilon} \times \left[S(E_p) \frac{dN(E_p)}{dE_p} + 0,71 \mu N(E_p) \right], \quad (2)$$

где A – атомный вес; ϵ – эффективность регистрации излучения; $S(E_p)$ – тормозные потери

Сечения возбуждения характеристического рентгеновского излучения
К-оболочки (мбарн)

E_p , МэВ	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
1.0	7.3	4.4	3.9	3.2	2.5	1.8	1.7	1.6	1.3	0.93	0.85	–	0.59	0.4
1.1	10	6.4	5.7	4.7	3.8	2.6	2.5	2.4	1.9	1.4	1.3	–	0.89	0.58
1.2	14	9.1	7.9	6.6	5.4	3.8	3.5	3.4	2.7	2	1.5	–	1.3	0.84
1.3	19	12	11	9	7.6	5.2	4.9	4.6	3.7	2.8	2.2	–	1.8	1.1
1.4	24	17	14	12	10	7.1	6.6	6.2	5	3.8	2.9	–	2.5	1.5
1.5	31	22	19	16	14	9.4	8.8	8.1	6.6	5.1	3.9	–	3.3	2.1
1.6	39	28	24	21	18	12	11	10	6.5	6.6	5	–	4.3	2.8
1.7	49	36	31	26	23	16	15	13	11	8.6	6.4	–	5.6	3.6
1.8	60	45	38	33	30	20	18	17	14	11	8.5	–	7.1	4.6
1.9	73	57	47	40	37	25	23	21	17	14	11	9.4	8.9	5.9
2.0	88	70	57	50	46	31	29	26	21	17	13	–	11	7.3
2.1	110	85	70	60	57	38	35	31	25	21	16	–	14	9
2.2	120	100	83	73	69	45	42	37	30	25	19	–	17	11
2.3	150	120	99	87	83	55	51	45	36	30	23	–	20	13
2.4	170	150	120	100	99	65	50	53	43	36	28	–	24	16
2.5	200	170	140	120	120	77	72	63	51	43	32	–	29	19
2.6	230	200	160	140	140	91	85	73	59	51	41	–	34	23
2.7	270	230	180	170	160	110	99	86	69	60	47	–	40	27
2.8	300	270	220	190	190	120	110	99	80	70	56	–	47	31
2.9	350	320	250	220	220	140	130	111	92	81	65	–	54	36
3.0	390	360	290	260	250	170	150	130	111	95	73	–	63	42

протонов в мишени при энергии E_p ; $N(E_p)$ – площадь суммы α и β пиков в спектре К-серии. В табл. 1. приведены полученные величины сечений возбуждения характеристического рентгеновского излучения К-оболочек атомов лантаноидов (сечение для Tm измерено только при одной энергии).

Сравнение экспериментальных данных из этой работы для элементов из начала и конца диапазона лантаноидов со значениями сечений ионизации рассчитанными по теории ЕСПSSR [6], импульсному приближению [11], и наиболее широко используемой эмпирической формуле в [7] приведено на рис. 2.

Видно, что и теоретические описания, и эмпирическая формула имеют значительные расхождения с экспериментом, и эти расхождения нарастают с увеличением порядкового номера элемента.

Для улучшения согласия с экспериментом для тяжелых элементов в работе [9] был предложен полином аналогичный (1), но подгонка осуществлялась отдельно по группам из десяти элементов (20 – 30, 30 – 40, 40 – 50 ...).

При этом ряд лантаноидов оказывался в трёх разных диапазонах подгонки, и полином имел отличающиеся коэффициенты, что затрудняло его применение для этой группы элементов. Полученный в НИЦ ХФТИ массив экспериментальных данных по сечениям ионизации К-оболочки лантаноидов был использован для создания аналитического описания зависимости сечения ионизации от энергии для всей группы лантаноидов. В качестве подгоночной функции использован полином вида (1). Вычисление коэффициентов многочлена, возможно, осуществить путём решения системы из n линейных уравнений. Однако для вычисления коэффициентов высокой степени ($n > 2$) возникает потеря точности при её решении, причём потеря точности проявляется сильнее при увеличении степени полинома. По этой причине предпочтительно использование ортогональных полиномов Чебышева. Младшие ортогональные полиномы Чебышева вычисляются непосредственно (по значениям экспериментальных данных), а старшие – с использовани-

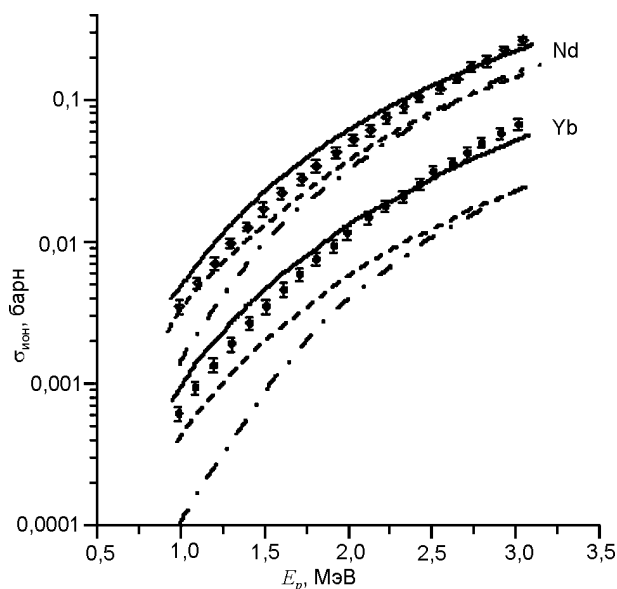


Рис. 2. Сравнение расчетных и экспериментальных данных по сечениям ионизации К-оболочки протонами; сплошная линия – ECPSSR, пунктирная – импульсное приближение, штрих пунктирная – Johansson.

ем рекуррентных соотношений [12]. Вычисление значений ортогональных полиномов Чебышева было осуществлено с помощью специально написанного компьютерного кода. Подгонка была проведена для значений n от 3 до 10. Для каждого значения n проводился обсчёт среднеквадратичных отклонений экспериментальных значений от расчётных. Было выяснено, что при значениях $n > 5$ уменьшение величины среднеквадратичного отклонения составляло лишь десятые доли процента на каждую степень полинома, поэтому выбор более высокой степени является излишним. Как наиболее оптимальное выбрано значение $n = 5$. В табл. 2 представлены коэффициенты полинома пятой степени A_j , полученные после преобразования полиномов Чебышева в выражение (1).

Таблица 2

Значения коэффициентов полинома для вычисления сечения ионизации, полученные в результате подгонки

A_0	500.39744
A_1	784.92085
A_2	496.34461
A_3	155.44018
A_4	24.026908
A_5	1.4684502

На рис. 3 представлены экспериментальные величины сечений ионизации К оболоч-

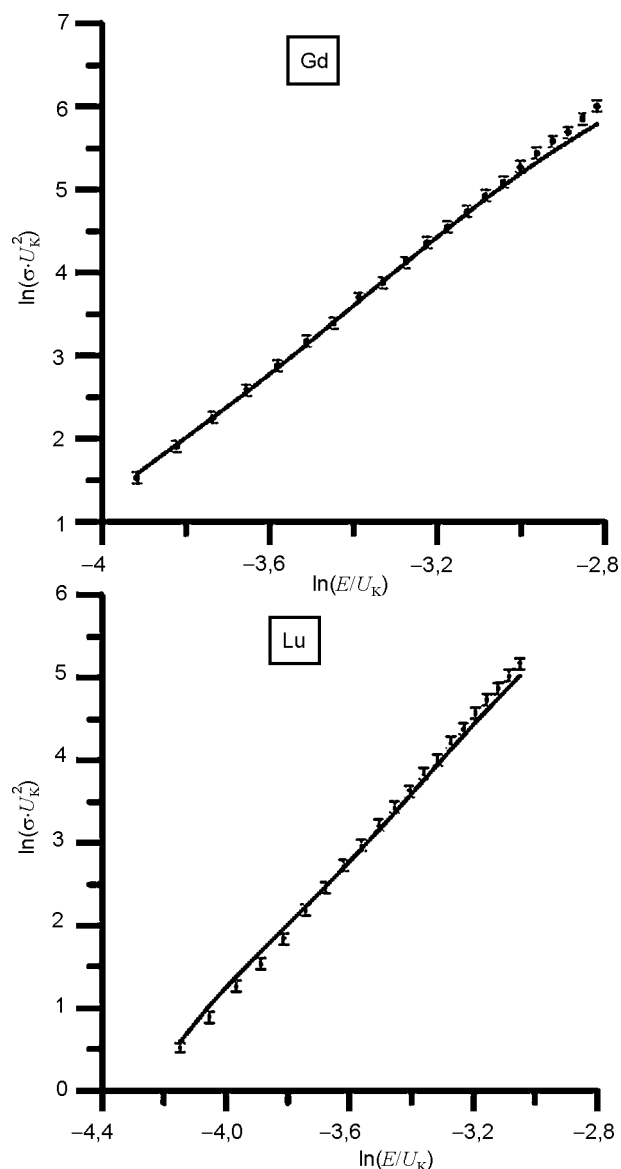


Рис. 3. Подгонка сечений ионизации К-оболочек Gd и Lu ускоренными протонами; сплошная линия – подгоночная функция.

ки для гадолиния и лютеция и подгоночная функция. Как видно из данных, приведенных на рис. 2 и на рис. 3, полученная формула позволяет существенно повысить точность вычисления сечений ионизации лантаноидов для создания методик анализа элементного состава по характеристическому рентгеновскому излучению, возбуждаемому ускоренными протонами.

Полученная аналитическая функция даёт возможность проводить интерполяцию экспериментальных данных сечений ионизации К-оболочек для всех лантаноидов в диапазоне энергий протонов от 1 МэВ до 3 МэВ (в том числе и для малораспространённого радиоактивного элемента прометия). При этом воп-

рос экстраполяции на более широкий диапазон энергий протонов с помощью этой функции требует отдельного изучения. Аналитическое представление сечений ионизации было апробировано для определения содержания лантаноидов абсолютным способом в различных материалах методом ХРИ на выведенном в атмосферу пучке протонов. Было измерено распределение выгорающего поглотителя на основе гадолиния в материалах ядерной энергетики. Благодаря отсутствию потребности в изготовлении стандартных образцов при использовании абсолютного способа анализа и применению полученной аналитической функции достигнута высокая экспрессность анализа.

ВЫВОДЫ

Полученное аналитическое выражение наиболее точно среди всех существующих эмпирических и теоретических представлений описывает экспериментальные величины сечений ионизации К-оболочек элементов с $57 \leq Z \leq 71$. Его использование позволяет существенно снизить погрешность определения содержания лантаноидов абсолютным способом в различных конструкционных и функциональных материалах, повысить качество анализа, его экспрессность и, тем самым, способствовать улучшению свойств и характеристик материалов, долговечности и надежности изготовленных из них изделий.

ЛИТЕРАТУРА

1. Basbas G., Brandt W., Laubert R. Universal Cross Sections for K-shell Ionization by Heavy Charged Particles. II. Intermediate Particles Velocities//Phys. Rev. – 1977. – Vol. A17. – P. 1655-1674.
2. Brandt W., Lapicki G. Energy loss effect in inner-shell Coulomb ionization by heavy charged particles//Phys. Rev. – 1981. – Vol. A23. – P. 1717-1729.
3. Gryzinski M. Two-Particle Collisions. I. General Relations for Collisions in the laboratory System//Phys. Rev. – 1965. – Vol. A138. – P. 305-321.
4. Gryzinski M. Two-Particle Collisions. II. Coulomb Collisions in the laboratory System of Coordinates//Phys. Rev. – 1965. – Vol. A138. – P. 322-335.

5. Halabuka Z., Perger W. and Trautmann D. SCA calculations of the inner shell ionization with Dirac-Fock electronic wave functions//Zeitschrift für Physik D. – 1994. – Vol. 29. – P. 151-158.
6. Cohen D.D. and Harrigan M.K. L-shell ionization cross-sections for protons and helium ions calculated in the ECPSSR theory//At. Data and Nucl. Dat. Tables.– 1985.– Vol. 33.– P. 255-275.
7. Johansson S.A.E., Johansson T.B. Analytical application of particle induced x-ray emission//Nucl. Instr. and Meth. – 1976. – Vol. 137. – P. 473-516.
8. Paul H., Sacher J. Fitted empirical reference cross sections for K-shell ionization by protons//Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 1989. – Vol. 42. – P. 105-156.
9. Nekkab M., Deghfel B., Kahoul A. Empirical K-shell ionization cross sections of elements from ${}^4\text{Be}$ to ${}^{92}\text{U}$ for proton impact//6th Conf. on Nuclear and Particle Physics (Luxor, Egypt). – 2007.
10. Левенец В.В., Ехичев О.И., Северин Н.Ф., Щур А.А. Сечения возбуждения характеристического излучения К-оболочки элементов от La до Lu протонами с энергией 1...3 МэВ //ВАНТ. Сер. Общая и ядерная физика. – 1985. – Вып. 2 (31). – С. 52-60.
11. Reuter W., Lurio L., Cardone F. and Ziegler J.F. Quantitative analysis of complex targets by proton-induced X-rays//J. Appl. Phys. – 1975. – Vol. 46. – P.3194-3202.
12. Румшицкий Л.З. Математическая обработка результатов эксперимента. – М.: Наука, 1971. – С. 66-69.

LITERATURA

1. Basbas G., Brandt W., Laubert R. Universal Cross Sections for K-shell Ionization by Heavy Charged Particles. II. Intermediate Particles Velocities//Phys. Rev. – 1977. – Vol. A17. – P. 1655-1674.
2. Brandt W., Lapicki G. Energy loss effect in inner-shell Coulomb ionization by heavy charged particles//Phys. Rev. – 1981. – Vol. A23. – P. 1717-1729.
3. Gryzinski M. Two-Particle Collisions. I. General Relations for Collisions in the laboratory System//Phys. Rev. – 1965. – Vol. A138. – P. 305-321.
4. Gryzinski M. Two-Particle Collisions. II. Coulomb Collisions in the laboratory System of Coordinates//Phys. Rev. – 1965. – Vol. A138. – P. 322-335.
5. Halabuka Z., Perger W. and Trautmann D. SCA calculations of the inner shell ionization with Di-

- rac-Fock electronic wave functions//Zeitschrift für Physik D. – 1994. – Vol. 29. – P. 151-158.
6. Cohen D.D. and Harrigan M.K. L-shell ionization cross-sections for protons and helium ions calculated in the ECPSSR theory//At. Data and Nucl. Dat. Tables. – 1985. – Vol. 33. – P. 255-275.
 7. Johansson S.A.E., Johansson T.B. Analytical application of particle induced x-ray emission//Nucl. Instr. and Meth. – 1976. – Vol. 137. – P. 473-516.
 8. Paul H., Sacher J. Fitted empirical reference cross sections for K-shell ionization by protons//Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 1989. – Vol. 42. – P. 105-156.
 9. Nekkab M., Deghfel B., Kahoul A. Empirical K-shell ionization cross sections of elements from ${}^4\text{Be}$ to ${}^{92}\text{U}$ for proton impact//6th Conf. on Nuclear and Particle Physics (Luxor, Egypt). – 2007.
 10. Levenec V.V., Ehichev O.I., Severin N.F., Schur A.A. Secheniya vozvuzhdeniya harakteristicheskogo izlucheniya K-obolochki elementov ot La do Lu protonami s energiej 1...3 MeV // VANT. Ser. Obschaya i yadernaya fizika. – 1985. – Vyp. 2 (31). - С. 52-60.
 11. Reuter W., Lurio L., Cardone F. and Ziegler J.F. Quantitative analysis of complex targets by proton-induced X-rays//J. Appl. Phys. – 1975. – Vol. 46. – P.3194-3202.
 12. Rumshiskij L.Z. Matematicheskaya obrabotka rezultatov eksperimenta. – M.: Nauka, 1971. – S. 66-69.