Ion-atom ütközésekben keltett Ar L-MM és Ne K-LL Auger elektronok szögeloszlása

Angular distribution of Ar L-MM and Ne K-LL Auger-electrons in ion-atom collisions

Doktori (Ph.D.) értekezés tézisei

Tóth László

Debreceni Egyetem

Természettudományi Kar

Debrecen, 2006

Készült:

A Magyar Tudományos Akadémia
Atommagkutató Intézetének
Atomi Ütközések Osztályán

Témavezető:

Dr. Ricz Sándor

Bevezetés

Az atomi ütközésekben lejátszódó folyamatok tanulmányozásának egyik módja a kirepülő elektronok energia- és szögeloszlásának együttes vizsgálata. Az elmúlt időszakban több erre alkalmas berendezést is kifejlesztettek az MTA Atommagkutató Intézetében (ATOMKI), melyek közül az egyik legsokoldalúbban használható az ESA-21 elektrosztatikus elektron-spektrométer, amivel számos nemzetközileg is elismert eredményt értek el.

Munkáim, melyek során kísérletileg tanulmányoztam a proton, illetve He^+ lövedékekkel bombázott Ne és Ar atomok által kibocsátott Auger-elektronok energia-, és szögeloszlását, is ezen vizsgálatsorozatokhoz kapcsolódnak. Célom az ion-atom ütközésekben fellépő ionizációs és legerjesztődési folyamatok, valamint az ütközés utáni kölcsönhatások minél teljesebb megismerése volt.

A kísérletekben használt proton-, és He^+ nyalábokat az ATOMKI 5MV-os Van de Graaff generátora szolgáltatta, és az Auger-elektronok irány szerinti energiaeloszlásának a vizsgálatát az ESA-21 három-menetes elektrosztatikus elektronspektrométerrel végeztem. A mérések nagy energiafelbontással, a nyalábirányhoz képest 0°-180°-ig terjedő szögtartományban, 15°- os lépésközzel történtek. A lövedékenergia a Ne Auger-spektrumok esetében proton lövedékekre 700-2000 keV, He^+ lövedékekre 2000 keV, valamint az Ar Auger-spektrumok esetében He^+ lövedékekre 1250-2000 keV volt.

A dolgozatom első fejezete rövid áttekintést ad a téma történeti hátteréről. A második részben a vizsgált folyamatok elméleti leírása található, különös tekintettel az ionizációs folyamatokra, az Auger-bomlásra, az Auger-elektronok szögeloszlására, és a nagy energiájú ion-atom ütközésekben fellépő ütközés utáni kölcsönhatásra. A harmadik fejezetben a mérések során alkalmazott kísérleti összeállítást, míg a negyedik fejezetben a mért Ar és Ne Auger-spektrumok kiértékelésénél alkalmazott módszereket mutatom be. Eredményeimet a dolgozat ötödik fejezete tartalmazza.

A vizsgálataim három fő témakörre oszthatók. Az egyik az atomi ütközések során fellépő ionizációs folyamatokkal foglalkozik, a másik a belső atomi héjak szerkezetének a tanulmányozásával kapcsolatos, míg a harmadik az ütközésből kirepülő töltött részecskék közötti, úgynevezett ütközés utáni kölcsönhatás szerepét tárgyalja.

Eredmények

Új tudományos eredményeimet a következő tézispontok tartalmazzák:

1. Az ionizációs folyamatok vizsgálata

Proton- és He^+-neon ütközésekben, a szimultán K- és L-héj ionizációt követő, úgynevezett szatellit Auger-elektronok szögeloszlását mértük széles lövedék energia tartományban és arra kerestünk választ, hogy mi okozza a kísérleti és elméleti beállítódási paraméterek közötti jelentős eltérést.

Megmutattuk, hogy könnyű lövedékek esetében a kétszeres ionizációból származó szatellit Auger-elektronok két folyamatból erednek. Az egyik a direkt kétszeres Coulomb-ionizáció, amely felelős a beállítódásért és valószínűsége a lövedék sebességével csökken. A másik az úgynevezett kirázódásos-ionizáció, amikor is az egyszeres K-héj ionizációt követő átrendeződés során, egy külső héjon lévő elektron szabad állapotba kerülhet és így az ütközés végállapotában ugyan úgy egy kétszeresen töltött ion bomlik el, mint a direkt folyamatok során. Ezen folyamat független a lövedék sebességétől és izotrop.

A két folyamat arányát megvizsgáltam He^+ lövedék esetére is, amikor a direkt és indirekt kétszeres ionizáció elméleti aránya közel négyszeresére nő a proton-lövedékhez képest, és a mért szögeloszlásokat a [2] cikkben közöltem. A direkt és indirekt ionizációt is figyelembe vevő számolásainkkal értelmezni tudtuk mérési a eredményeink lövedék sebességtől való függését, és vizsgálataim, a korábbiakat kiegészítve, a nyalábirányhoz képest előre szögekben is használható eredményekre vezettek.

Ezen munkákban jelentős szerepem volt a mérések kivitelezésében, a spektrumok kiértékelésében, valamint a mért adatok értelmezésében.

A tézisponthoz az [1], [2] és [P6] közlemények kapcsolódnak.

2. A belső atomi héjak szerkezetének kapcsolata az Auger-elektronok irányeloszlásának anizotrópiájával.

2/a. Koherencia- és korrelációs hatások a Ne KL-LLL szatellit Auger-bomlás anizotrópiájában.

Az elméleti vizsgálatok alapján az Auger-bomlásból kirepülő elektronok irányeloszlásának anizotrópiája nagy érzékenységet mutathat az elektronállapotok keveredésének a mértékére, illetve a kezdeti-, valamint a végállapotbeli spin- és pályamomentumok csatolódásaira.
Kísérleti úton elsőként mutattam meg, hogy az Auger-bomlás anizotrópiája valóban érzékeny indikátora az elektronállapot-keveredések mértékének. Továbbá a módszer alkalmazásával arra is fény derült, hogy a Ne vizsgált elektronállapotainak az egymással való keveredése minden bizonnyal kisebb mértékű annál, mint ahogy azt az előzetes elméleti vizsgálatok sugallták.
Ezen munkáim egyedülállóak, ami minden bizonnyal a felmerülő mérési, valamint adatfeldolgozási nehézségeknek köszönhető.

A tézisponthoz az [2] és [P11] közlemények kapcsolódnak.

2/b. Az Ar L-MMM szatellit Auger-elektronok anizotrop szögeloszlása

Ar céltárgyból kirepülő Auger-elektronok anizotrop szögeloszlását vizsgáltam nagy energiafelbontással, olyan He^+ lövedéksebességeknél, ahol az Auger-elektronok irányeloszlását jellemző anizotrópia-paraméter rendkívül kicsi. A felmerülő kísérleti nehézségek miatt ez az energia tartomány fehér foltnak számít az anizotrópia jelenségek tanulmányozásában.
A mért és számolt anizotrópia paraméterek összehasonlítása alapján azt a következtetést vontam le, hogy az adott sebességtartományon belül, a viszonylagosan nagy relatív hibák következtében, nem lehet egyértelmű különbséget tenni az LS-, valamint a közbenső csatolást használó elméletek között, de az előjelek következetes egyezése miatt a közbenső csatolásban számolt anizotrópia paraméterek jobban egyeznek a kísérleti adatokkal.
A vizsgálatok során meghatározó szerepem volt a mérések kivitelezésében, a spektrumok kiértékelésében, valamint a mért adatok értelmezésében. Továbbá elmondható, hogy ezen

általam mért Ar L-MM Auger-spektrumok napjainkig is a legpontosabbak közé tartoznak.

A tézisponthoz a [3] közlemény kapcsolódik.

3. Az ütközés utáni kölcsönhatás következményeinek tanulmányozása

3/a. Az elsődlegesen kilökött elektronok szerepe az ütközés utáni kölcsönhatás alakulásában

Az atomi ütközésből kirepülő töltött részecskék Coulomb-terének az Auger-elektronokra gyakorolt hatását ütközés utáni kölcsönhatásnak (Post Collision Interaction, PCI) nevezzük, amely a lövedék sebességének és irányának a függvényében rezonáns folyamat. Ez akkor a legintenzívebb, amikor a lövedék sebessége a kirepülő Auger-elektron sebességével megegyezik és legszembetűnőbben az Auger-csúcs energiájának eltolódásában, alakjának torzulásában és intenzitásának megváltozásában nyilvánul meg.
Ezen jelenség első átfogó kísérleti tanulmányozásában én is részt vettem, aminek során részletesen vizsgáltuk az ütközés utáni kölcsönhatásnak a kirepülő Auger-elektron és a szóródott lövedék által bezárt szög, és lövedékenergia szerinti függését.
A PCI leírására korábban alkalmazott elméletek azonban csak a lövedéknek az Auger-elektronra gyakorolt hatását vették figyelembe és elhanyagolták a többi kirepülő részecskét. Elsőként az általam, He^+-Ar ütközésben végzett mérések mutattak rá, hogy ez a modell nem elegendő a folyamat maradék nélküli leírására és, hogy még figyelembe kell vennünk legalább az elsődlegesen kilökött elektronokat is. A későbbi méréseink, és elméleti analízisünk mindezt igazolták.

A tézisponthoz a [3], [4], [P1-P3], [P4] és a [P7-P10] közlemények kapcsolódnak.

3/b. A lövedék Coulomb-terének fokuszáló hatása a kirepülő Auger-elektronokra nézve

A PCI-nek van egy Coulomb-fokuszálásnak nevezett megnyilvánulása, amely szintén rezonáns folyamat és csak a szórt lövedék iránya körüli szűk szögtartományon belül figyelhető meg. Ez ugyancsak a lövedék és a kirepülő Auger-elektron között fellépő Coulomb-kölcsönhatásnak a következménye. Ennek során az eltávozó lövedék a haladási irányához képest kis szöggel kirepülő Auger-elektronokat önmaga felé fokuszálja, megnövelve ezáltal a távozó lövedék irányában mérhető Auger-intenzitást.
Ennek kapcsán megmutattam, hogy a jelenség megfigyelhető a Ne KL-LLL szatellit Auger-vonalak szögeloszlásában, és részt vettem azon vizsgálatokban, amelyek később a Ne K-$L_{2,3}L_{2,3}$ (^1D) diagram vonal esetében tanulmányozták a Coulomb-fokuszálás következtében fellépő intenzitásváltozásokat.
A jelenség felderítésére tudatosan irányuló első, méréssorozatot én végeztem, és a későbbi mérésekben is aktívan rész vettem.

A tézisponthoz a [4] és [5] közlemények kapcsolódnak.

English summary of the thesis

One of the methods of studying ion-atom collisions is the simultaneous investigation of the energy and angular distributions of outgoing electrons. In the last decades several suitable instruments were developed in the Nuclear Research Institute of the Hungarian Academy of Sciences (ATOMKI) for such investigations. One of them is the ESA-21 electrostatic electron spectrometer which achieved several internationally recognized results. My works, where I have experimentally studied the energy- and angular-distribution of the Auger-electrons emitted from Ne and Ar atoms following proton and He^+ impact ionization, are also connected to this instrument.
My aim was the more complete study of ionization and decaying processes, as well as the Post Collision Interactions in ion-atom collisions.
The proton and He^+ beams used in the experiments were obtained from the 5 MV Van de Graaff accelerator of ATOMKI and the energy and angular distribution of Auger-electrons, ejected in the scattering plane, were analyzed by the ESA-21 triple stage electron

spectrometer. The relative energy resolution of our measurement was high and the spectra were gathered with 15° steps within the 0°- 180° observation angle range relative to the beam direction. In the case of the Ne Auger spectra the measurements were performed using 700-2000 keV proton- and 2000 keV He^{+} projectiles. In the case of the Ar Auger spectra the measurements were performed using 1250-2000 keV He^{+} projectiles.

In my dissertation a brief historical overview is given in the introductory chapter summarizing the precursors of the present study. A summary of the theoretical description the processes related to the present work is given in the second chapter. In particular, the discussion of the ionization processes, the Auger-decay, the theory of angular distribution of the Auger-electrons, and the Post Collision Interaction (PCI) in fast ion-atom collisions are given. In the third chapter the experimental setup is presented. In the fourth chapter I discuss the details of the measured Ar- and Ne Auger spectra and the details of the methods and procedures applied in the data processing. In the fifth chapter the results of my work are presented in five sections.

Three main subjects of my results are discussed in my dissertation. One deals with the ionization processes during atomic collisions, the second is connected to the investigation of the structure of inner atomic shells, and the third one deals with the Post Collision Interaction between the outgoing charged particles emitted from the target atom.

Results

My results are summarized in the following paragraphs.

1. Investigation of ionization processes

We have studied the angular distribution of satellite Auger-electrons following simultaneous K- and L-shell ionization induced by proton and He^{+} projectiles in wide energy regions, and wanted to know the reason of the differences between the measured and calculated alignment parameters.

We have shown that the satellite Auger-electrons can be originated from two different ionization processes. One is the direct double Coulomb-ionization which is responsible for the alignment of target ion but its probability decreases as the projectile velocity increases. The other one is the shake-off ionization where following a single K-shell ionization in

consequence of the rearranging processes an outer electron is rejected. Although it produces double ionization that can decay by emitting satellite Auger-electrons, but these processes are anisotropic and independent of the projectile velocity.

I investigated the ratio of these two processes in the case of He^+ projectile where the theoretical ratio of the direct and indirect ionization processes is four times bigger compared to the case of proton projectile. With our calculations that took into account both the direct and indirect ionization processes we could give an explanation of the projectile velocity dependence of the alignment parameters. Furthermore, my investigations extended the earlier and gave usable results in the forward directions with respect to the projectile beam direction.

In these works I played main role in the making experiments and data processing, as well as in the interpretation of measured data.

The related publications are [1], [2] and [P6].

2. Connection between the structure of inner atomic shells and the anisotropy of Auger-decay

2/a. Experimental Study of Coherence and Correlation in the Anisotropy of Ne KL-LLL Satellite Auger Decay

On the basis of theoretical investigations the angular anisotropy of electron emission is sensitive to the coherent excitation of overlapping atomic states and to the coupling of spin and orbital angular momenta in the initial and final bound states of Auger emission.

Experimentally I have shown first that the anisotropy of the Auger-electron emission (from double-vacancy states) is indeed sensitive to the extent of the overlap of different (coherently excited) atomic states. Furthermore, I have shown that this overlap in the case of Ne 1s2p double-vacancy states is smaller then it was supposed earlier.

These results have the most important novelties in the present work and are unique presumably due to the experimental and data processing difficulties.

The related publications are [2] and [P11].

2/b. The anisotropic angular distribution of Ar L-MMM satellite Auger-electrons

I have investigated the anisotropic angular distribution of Auger-electrons emitted from Ar target in such He^+ projectile velocity region where the anisotropy-parameter, that describes the angular distribution of Auger-electrons, is close to zero. Because of the experimental difficulties the studied energy region is counted as undiscovered area in the field of studying anisotropy phenomena.

I have compared my experimental results with two different theories calculated in intermediate- and LS-coupling. As a result it can be concluded that both of the theories are suitable to describe the angular anisotropy, although the consistent agreement of the signs of the measured parameters with the results calculated in the intermediate coupling shows that the intermediate coupling scheme is more appropriate for the treatment of the problem.

I had crucial role in the making of experiments and data processing, as well as in the interpretation of measured data. Furthermore, these Ar L-MMM spectra measured by me are the most accurate even at present.

The related publication is [3].

3. Study of post collision interaction

3/a. The role of prompt electrons in the post collision effect.

The Coulomb interaction between charged particles and the decaying fragments produced in an atomic collision is called Post Collision Interaction (PCI) that is resonant process and depends on the direction and value of projectile velocity. It is the most intensive when the velocity of projectile is the same as the velocity of outgoing Auger-electron. When the excited atomic or ionic species decay by an Auger process, the PCI is manifested in the energy shift, line shape distortion and intensity variation of the Auger lines.

I participated in the first overall measurements regarding to the investigation of the angular and projectile energy dependence of PCI effect.

However, in the earlier theoretical descriptions of PCI the Coulomb interaction was taken into account just between the projectile and the Auger-electron and neglected the effect of the other outgoing particles. I have made the first measurement in He^+ - Ar collisions, which

showed that these models can't describe the processes entirely and for the proper description I suggested to take into account not only the effect of the projectile but at least the prompt electrons. Our later experimental and theoretical investigations proved this assumption.

The related publications are [3], [4], [P1-P4], [P5], [P7-P10].

3/b. The effect of Coulomb focusing on the outgoing Auger-electrons

The Coulomb focusing effect of PCI is also a resonant process and appears within a small angular region around the scattered projectile. This effect is due to the strong Coulomb attraction between the two outgoing charged particles, the projectile and the Auger-electron, with matching velocities. At this time the outgoing projectile is focuses the electrons towards the direction of its motion hereby increasing the Auger-intensity in that direction.
In connection with this I have shown that the variation of the intensity of the Ne K-LL satellite Auger lines due to Post Collision Interaction is observable and the experimental data confirm the theoretically predicted focusing effect of PCI. Furthermore, I participated in those additional experimental and theoretical investigations which studied the Coulomb focusing effect in the case of Ne K-$L_{2,3}L_{2,3}$ (^1D) diagram line.

I made the first conscious exploratory measurements for these phenomena, as well as, participated in the following investigations.

The related publications are [4] and [5].

A tézisek alapjául szolgáló közlemények (Published articles related to the thesis)

[1] Takács E., Ricz S., Végh J., Kádár I., Pálinkás J., Sulik B., **Tóth L.**, Berényi D., Kabachnik, N.M.: 'Alignment of the 1s2p vacancy states of Ne doubly ionized by 700-2000-keV proton impact', *Physical Review "A"*, **50,** 1197 (1994)

[2] **Tóth L**., Ricz S., Takács E., Sulik B., Végh J., Kádár I.: 'Experimental Study of Coherence and Correlation in the Anisotropy of Ne KL-LLL Satellite Auger Decay', *Physical Review "A"*, **69,** 1050 (2004)

[3] **Tóth L.**, Víkor Gy., Ricz S., Pelicon, P., Miller, R.: 'Study of the Ar LMM spectra by He^+ projectile at 1250 keV, 1500 keV and 2000 keV bombardment energies', *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research "B"*, **86,** 151 (1994)

[4] Takács E., Sarkadi L., Ricz S., Sulik B., **Tóth L**.: 'Measurement of post-collision interaction effects for p on Ne collisions', *Journal of Physics "B"*, **24,** 381 (1991)

[5] Víkor Gy., Ricz S., Sulik B., **Tóth L**., Kövér Á., Végh J.: 'Strong projectile-energy dependence of the Auger-line intensity at 0 degree due to Coulomb focusing in fast proton-neon collisions', *Journal of Physics "B"*, **29,** 787 (1996)

Konferencia előadások, poszterek (Conference talks and posters)

[P1] Takács E., Sarkadi L., Ricz S., Sulik B., **Tóth L.**: **'**Measurement of post-collision interaction effects for proton Ne collisions', *Seventeenth International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions (XVII.ICPEAC), Brisbane.*, Brisbane, Australia, (1991)

[P2] Takács E., Sarkadi L., Ricz S., Sulik B., **Tóth L.**: **'**Measurement of post-collision interaction effects for p on Ne collisions', *2nd Debrecen-Uzhgorod-Miskolc Triangle Seminar on Atomic Collision, Miskolc*, (1991)

[P3] Ricz S., Kádár I., Végh J., Fülöp Zs., Takács E., Wakiya K., Szabó Gy., **Tóth L.**: **'**A possible post collision interaction in the electron capture to continuum process', *Hahn-Meitner Institut GmbH, Berlin, Germany*, (1991)

[P4] Ricz S., Takács E., Kádár I., Sarkadi L., Végh J., **Tóth L.**, Sulik B., Berényi D.: 'Resonant post collision interaction in p-Ne collision', *ORNL. Oak Ridge, USA*, (1992)

[P5] **Tóth L.**, Víkor Gy., Ricz S., Pelicon, P., Miller, R.: 'Study of the Ar LMM spectra by He^+ projectile at 1250, 1500 and 2000 keV bombarding energies', *5th Workshop on Fast Ion-Atom Collisions. Debrecen, Hungary*, (1993)

[P6] Takács E., Ricz S., Végh J., Kádár I., Pálinkás J., Sulik B., **Tóth L.**, Berényi D.: 'The role of the shake-off ionization process in the alignment of the 1s2p double vacancy states of Ne at high proton impact energies', *X'93 Sixteenth International Conference on X-Ray and Inner-Shell Processes. Debrecen,* (1993)

[P7] Ricz S., Takács E., Kádár I., Végh J., **Tóth L**., Sulik B., Berényi D.: 'Angular dependence of the PCI effect in proton-neon collisions', *XVIIIth International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions. Aarhus, Denmark,* 522 (1993)

[P8] Víkor Gy., **Tóth L.**, Ricz S., Pelicon, P., Sulik B., Végh J., Kövér Á.: 'Measurements of angular dependence of post collision interaction in ion-atom collisions at medium energies', *Energiereiche Atomare Stösse*, EAS-**15**, 29, (1994)

[P9] Pelicon, P., Ricz S., **Tóth L**., Víkor Gy.: 'Screening of the post-collision interaction in the ion-atom collision', *5th EPS Conference on Atomic and Molecular Physics (ECAMP5). Edinburgh*, Ed. R.C.Tompson, **19A,** 552 (1995)

[P10] Víkor Gy., Ricz S., Sulik B., Kövér Á., **Tóth L.**, Végh J., Paripás B.: 'The Auger-line intensity enhancement due to the fast ion-atom post-collision interaction', *6th Workshop on Fast Ion-Atom Collisions. Debrecen, Hungary*, 24 (1996)

[P11] **Tóth L.**, Ricz S., Takács E., Sulik B., Végh J., Kádár I.: 'Study of Ne KLL satellite Auger spectra ionized by 700-2000 keV proton impact', *6th Workshop on Fast Ion-Atom Collisions. Debrecen, Hungary*, 47 (1996)